



# Contributions à l'étude de la production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL

Stéphane Gibouin

## ► To cite this version:

Stéphane Gibouin. Contributions à l'étude de la production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université de Caen, 2003. Français. NNT : . tel-00002930

**HAL Id: tel-00002930**

**<https://theses.hal.science/tel-00002930>**

Submitted on 3 Jun 2003

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**Université de Caen / Basse-Normandie**

**U.F.R. : Sciences**

**École Doctorale SIMEM :**

Sciences des Structures, de l'Information, de la Matière Et des Matériaux

## **THESE**

présentée par

**M. Stéphane GIBOUIN**

et soutenue

**le 19 mai 2003**

en vue de l'obtention du

**DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ de CAEN**

*Spécialité : Sciences de la matière et génie des procédés*

(Arrêté du 25 avril 2002)

**Titre :**

# **Contributions à l'étude de la production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL**

## **MEMBRES du JURY**

**M. Antonio C. C. VILLARI**, H.D.R., Chargé de Recherche CNRS, GANIL-Caen (**Directeur de thèse**)

**M. Nicolas ALAMANOS**, Docteur d'Etat, Ingénieur CEA, DAPNIA/SPhN - Saclay (**Rapporteur**)

**M. Peter DENDOOVEN**, Docteur, Senior Researcher, KVI - Groningen (**Rapporteur**)

**M. Jean-Pierre GRANDIN**, Directeur de recherche CNRS, CIRIL - Caen

**M. Daniel GUERREAU**, Directeur de Recherche CNRS, IN2P3 - Paris

**M. Jean-Pierre THIBAUD**, Directeur de Recherche CNRS, CSNSM – Orsay



**Université de Caen / Basse-Normandie**

**U.F.R. : Sciences**

**École Doctorale SIMEM :**

Sciences des Structures, de l'Information, de la Matière Et des Matériaux

**THESE**

présentée par

**M. Stéphane GIBOUIN**

et soutenue

**le 19 mai 2003**

en vue de l'obtention du

**DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ de CAEN**

*Spécialité : Sciences de la matière et génie des procédés*

(Arrêté du 25 avril 2002)

*Titre :*

**Contributions à l'étude de la production  
de faisceaux d'ions radioactifs  
par la méthode ISOL**

**MEMBRES du JURY**

**M. Antonio C. C. VILLARI**, H.D.R., Chargé de Recherche CNRS, GANIL-Caen (**Directeur de thèse**)

**M. Nicolas ALAMANOS**, Docteur d'Etat, Ingénieur CEA, DAPNIA/SPhN - Saclay (**Rapporteur**)

**M. Peter DENDOOVEN**, Docteur, Senior Researcher, KVI - Groningen (**Rapporteur**)

**M. Jean-Pierre GRANDIN**, Directeur de recherche CNRS, CIRIL - Caen

**M. Daniel GUERREAU**, Directeur de Recherche CNRS, IN2P3 - Paris

**M. Jean-Pierre THIBAUD**, Directeur de Recherche CNRS, CSNSM – Orsay



*A mes parents,*

*A Christelle et Cyril,*

*A l'existence de cette thèse, qui m'a permis de croiser ta route, Anne-Sophie, et de partager avec toi le bonheur de la vie.*



# Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier les différentes directions qui se sont succédées à la tête du laboratoire GANIL, Messieurs D. Guerreau et J. Fouan, puis Messieurs D. Goutte et M. Lewitowicz, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire et m'avoir permis d'effectuer cette thèse dans les meilleures conditions possibles.

Je remercie tous les membres du jury de cette thèse d'avoir accepté d'en faire partie. Je remercie N. Alamanos et P. Dendooven d'avoir accepté d'en être les rapporteurs, avec un remerciement particulier à Peter qui a dû lire ma thèse, et rédiger son rapport, en français. Je remercie D. Guerreau d'avoir accepté d'être mon directeur de thèse auprès de l'université de Caen, en attendant qu'Antonio passe son habilitation à diriger des recherches. Je remercie également J.P. Grandin et J.P. Thibaud.

Un très grand merci, du fond du cœur, à Antonio C. C. Villari, mon directeur de thèse. J'ai apprécié, chez Antonio, ses connaissances pluridisciplinaires, son potentiel de création et son éternel optimisme, mais aussi, et c'est tout aussi important à mes yeux, ses qualités humaines exceptionnelles : énorme modestie, respect et écoute des autres, bonne humeur et j'en passe. Merci à toi, Antonio, pour la confiance en mon travail que tu as souvent manifestée et pour ton soutien moral.

Je tiens à remercier énormément Marie-Geneviève Saint-Laurent pour l'aide inconditionnelle qu'elle m'a apportée pendant la préparation des expériences, pour les discussions scientifiques que nous avons eues et pour le temps considérable qu'elle a consacré à mon rapport de thèse.

Je remercie chaleureusement toutes les personnes liées, de près ou de loin, aux ensembles cible-source, grâce à lesquelles les expériences de cette thèse ont pu être réalisées : R. Leroy, N. Lecesne, G. Gaubert, P. Jardin, J.Y. Pacquet et F. Pellemoine (merci beaucoup, à tous les deux, pour l'aide que vous avez su m'apporter aux moments où j'en avais particulièrement besoin), L. Maunoury, C. Barué, P. Leherissier, J.P. Rataud, C. Marry et R.



Alves Conde (merci, à tous les deux, pour votre aide indispensable dans la préparation des expériences), Y. Huguet.

Je remercie également toutes les personnes qui ont participé à ce travail de thèse : C. Stodel, J.M. Casandjian, S. Kandri, A. Khouaja, D. Nayak, G. Dhilly, M. Voisin, M. Ozille, O. Tuske, J.C. Angélique, F. Bocage, O. Bajeat, S. Essabaa, H. Lefort, A. Joinet, C. Lau et un grand merci particulier à S. Aiello.

Je voudrais remercier à nouveau P. Dendooven pour m'avoir accueilli à Jyväskylä au début de ma thèse. Merci également à G. Cachel, R. Béraud et G. Lhersonneau pour les moments agréables passés là-bas.

Je tiens également à remercier toutes les personnes des services administratifs, informatiques et techniques pour toutes les aides, plus ou moins directes, qui ont contribué au bon déroulement de cette thèse. Un merci particulier à A. Kahwati pour tous les conseils avisés qu'il m'a apportés et à A. Latour, pour sa gentillesse et ses aides nombreuses.

Je remercie également tous les amis avec qui j'ai partagé de très bons moments pendant cette thèse : Benoît et Yann (pour les sorties VTT à grand dénivelé), Stéphane alias Babas (pour les parties de tennis), Jean-luc (pour ses incontournables cours de rhétorique), Jacques (pour qui tous les chemins partant de Caen et allant à Iffs passent par Bayeux), Josquin (pour sa bonne humeur quotidienne), Olivier et Sylvie (pour toutes les soirées Rue des Tulipes), Pierre et Bertrand.

Et bonne chance à tous ceux qui vont soutenir : Lydie, Cédric, Charles-Edouard, Alexis, Abdenbi, Josquin, Vincent, Jimmy et Carmen.

Un très grand merci également à toute l'équipe Corpo de tennis du GANIL avec laquelle j'ai passé d'agréables moments tennistiques.

Enfin, mes dernières pensées vont à ma dulcinée : merci, Anne-Sophie, pour ta compréhension et ta patience pendant toutes mes absences au cours de ma dernière année de thèse et pour le soutien quotidien que tu m'as apporté.

# Table des matières

<b>Introduction.....</b>	<b>13</b>
<b>Chapitre I : Aspects généraux de la production de faisceaux d'ions radioactifs à partir de la méthode ISOL.....</b>	<b>17</b>
<b>I.1 Les mécanismes de réaction.....</b>	<b>18</b>
I.1.1 Section efficace totale de réaction.....	19
I.1.2 Les collisions périphériques.....	20
I.1.3 Les collisions centrales.....	21
<b>I.2 La méthode ISOL.....</b>	<b>23</b>
I.2.1 La technique « cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique ».....	24
I.2.1.1 Diffusion des atomes radioactifs produits.....	25
I.2.1.2 Effusion des atomes radioactifs produits.....	30
I.2.1.3 Utilisation d'une source d'ions.....	34
I.2.2 La technique « cible mince – stoppeur solide – source d'ions – séparateur isotopique »... ..	36
I.2.3 La technique « cible mince – stoppeur gazeux – jet d'hélium – source d'ions – séparateur isotopique » .....	36
I.2.4 La technique « cible mince – guide d'ions – séparateur isotopique » .....	38
I.2.5 Bilan général qualitatif de la méthode ISOL .....	39
<b>I.3 Cas particulier du GANIL.....</b>	<b>40</b>
I.3.1 La production des ions radioactifs au GANIL .....	40
I.3.2 L'installation SPIRAL .....	44
I.3.2.1 Les ensembles cible-source de SPIRAL .....	44
I.3.2.2 Le cyclotron CIME .....	47
I.3.3 Le banc de tests SIRa.....	48
<b>I.4 Une nouvelle méthodologie pour caractériser les ensembles cible-source : la « méthode globale » .....</b>	<b>49</b>
I.4.1 Evolution temporelle et saturation en régime permanent .....	49
I.4.2 Les méthodologies déjà utilisées au GANIL .....	50
I.4.2.1 La méthode « mesure directe ».....	50
I.4.2.2 La méthode « saturation du taux de production » .....	51
I.4.2.3 La méthode « temps de montée » .....	52
I.4.3 La nouvelle méthodologie : la « méthode globale ».....	54
I.4.4 Détermination des barres d'erreur liées à la « méthode globale » .....	55
I.4.4.1 Détermination par la méthode des moindres carrés.....	55
I.4.4.2 Détermination par la méthode de Monté-Carlo.....	56

I.4.5 Mise en application théorique de la « méthode globale » pour un ensemble cible-source fictif.....	56
I.4.5.1 Données fictives utilisées.....	56
I.4.5.2 Convergence de la méthode .....	58
I.4.5.3 Détermination des barres d'erreur des paramètres .....	58

## **Chapitre II : La production de faisceaux d'ions radioactifs avec SPIRAL.....63**

### **II.1 Le démarrage de SPIRAL : les faisceaux de gaz rares radioactifs .....63**

II.1.1 Mesures, sur SIRa, des taux de production de faisceaux de néon radioactif.....	64
II.1.1.1 Méthodes de mesure utilisées.....	64
II.1.1.2 Taux de production des faisceaux de $^{17}\text{Ne}$ , $^{18}\text{Ne}$ et $^{19}\text{Ne}$ .....	65
II.1.1.3 Comparaison des taux de production dans la cible avec les taux de production des faisceaux mesurés .....	67
II.1.1.4 Comparaison des distributions en état de charge du $^{17}\text{Ne}$ , $^{18}\text{Ne}$ et $^{19}\text{Ne}$ .....	67
II.1.1.5 Comparaison des taux expérimentaux de production des faisceaux avec les anciennes mesures .....	68
II.1.1.6 Stabilité temporelle du taux de production du faisceau de $^{18}\text{Ne}^{4+}$ .....	69
II.1.1.7 Prévisions des taux de production des faisceaux de $^{17}\text{Ne}$ , $^{18}\text{Ne}$ et $^{19}\text{Ne}$ pour SPIRAL.....	70
II.1.2 Caractérisation de l'ensemble cible-source de SPIRAL pour la production des faisceaux de néon radioactif .....	71
II.1.2.1 Efficacité totale du système en régime permanent.....	71
II.1.2.2 Données expérimentales utilisées.....	71
II.1.2.3 Choix et obtention des paramètres .....	72
II.1.3 Intensités des faisceaux de gaz rares radioactifs mesurées sur SPIRAL.....	75

### **II.2 Recherche de nouveaux faisceaux d'ions radioactifs pour SPIRAL : les faisceaux d'oxygène, d'azote et de fluor radioactifs .....75**

II.2.1 La production de faisceaux d'éléments radioactifs condensables pour SPIRAL : une étape difficile à franchir.....	75
II.2.1.1 Difficulté d'utilisation d'un tube de transfert chaud avec une source d'ions ECR.....	75
II.2.1.2 Transport sous forme moléculaire volatile .....	76
II.2.2 Mise en place d'une expérience sur SIRa.....	78
II.2.3 Mesures d'efficacité pour l' $^{14}\text{O}$ et l' $^{13}\text{N}$ .....	80
II.2.3.1 Efficacité pour l' $^{14}\text{O}$ .....	81
II.2.3.2 Mesures d'efficacité d'ensembles cible-source, pour l'oxygène, dans d'autres laboratoires .....	83
II.2.3.3 Efficacité de diffusion-effusion pour l' $^{14}\text{O}$ .....	84
II.2.3.4 Efficacité pour l' $^{13}\text{N}$ .....	87

II.2.4 Mesure des taux de production de l' <sup>15</sup> O, de l' <sup>14</sup> O et de l' <sup>13</sup> N sur le banc de tests SIRa et prévisions pour SPIRAL .....	88
II.2.4.1 Taux de production de l' <sup>15</sup> O et de l' <sup>14</sup> O .....	89
II.2.4.2 Cas particulier de l' <sup>13</sup> O.....	91
II.2.4.3 Prévisions des taux de production de l' <sup>14</sup> O et de l' <sup>15</sup> O pour SPIRAL .....	91
II.2.4.4 Taux de production de l' <sup>13</sup> N.....	92
II.2.4.5 Prévisions des taux de production de l' <sup>13</sup> N pour SPIRAL.....	93
II.2.5 Taux de production du <sup>18</sup> F .....	94
<b>II.3 Perspectives.....</b>	<b>94</b>

## **Chapitre III : La production des faisceaux d'alcalins radioactifs avec MONOLITHE.....97**

<b>III.1 MONOLITHE : un ensemble plus compact basé sur la méthode ISOL .....</b>	<b>98</b>
III.1.1 Choix d'un ensemble cible-source approprié .....	98
III.1.2 Principe de fonctionnement d'une source à cavité chaude.....	99
III.1.2.1 Principe d'ionisation.....	99
III.1.2.2 Efficacité d'ionisation d'une source à cavité chaude .....	100
III.1.3 L'ensemble cible-source MONOLITHE.....	101
III.1.4 Estimation de l'efficacité totale de l'ensemble cible-source MONOLITHE pour la production des faisceaux d'alcalins radioactifs.....	103
III.1.4.1 Définition de l'efficacité totale de MONOLITHE.....	103
III.1.4.2 Valeurs des paramètres de l'ensemble cible-source.....	104
III.1.4.3 Estimation de l'efficacité totale de MONOLITHE pour la production des faisceaux de lithium radioactif .....	104
III.1.4.4 Estimation de l'efficacité totale de MONOLITHE pour la production des faisceaux de sodium radioactif .....	105
<b>III.2 Premiers résultats expérimentaux de MONOLITHE.....</b>	<b>107</b>
III.2.1 Préparation pré-expérimentale.....	107
III.2.1.1 Dégazage et étalonnage en température .....	107
III.2.1.2 Dégazage sur le banc de tests SIRa.....	109
III.2.2 Mesures des taux de production des faisceaux d'alcalins radioactifs .....	109
III.2.2.1 Détermination des taux de production des noyaux d'alcalins radioactifs arrêtés dans la cible de diffusion .....	110
III.2.2.2 Modes de détection utilisés.....	110
III.2.2.3 Taux de production des faisceaux de sodium radioactif .....	111
III.2.2.4 Taux de production des faisceaux de lithium radioactif.....	112
<b>III.3 Caractérisation de l'ensemble cible-source MONOLITHE pour la production des faisceaux d'alcalins radioactifs .....</b>	<b>113</b>
III.3.1 Caractérisation de MONOLITHE pour la production des faisceaux de sodium radioactif .....	114
III.3.1.1 Données expérimentales d'efficacité totale .....	114

III.3.1.2 Choix des paramètres .....	116
III.3.1.3 Obtention des paramètres pour $t_0$ égal à $1,0 \cdot 10^{-15}$ s .....	117
III.3.1.4 Obtention des paramètres pour $t_0$ égal à $1,0 \cdot 10^{-13}$ s .....	118
III.3.1.5 Bilan des paramètres obtenus.....	119
III.3.2 Caractérisation de MONOLITHE pour la production des faisceaux de lithium radioactif .....	122
III.3.2.1 Données expérimentales d'efficacité totale .....	122
III.3.2.2 Choix des paramètres .....	124
III.3.2.3 Obtention des paramètres pour $t_0$ égal à $1,0 \cdot 10^{-15}$ s .....	124
III.3.2.4 Obtention des paramètres pour $t_0$ égal à $1,0 \cdot 10^{-13}$ s .....	125
III.3.2.5 Bilan des paramètres obtenus.....	125
III.3.3 Cas particulier des coefficients d'Arrhenius .....	128
<b>III.4 Perspectives .....</b>	<b>129</b>
 <b>Chapitre IV : La production des faisceaux d'éléments radioactifs condensables et/ou à court temps de vie avec la technique IGISOL.....</b>	 <b>131</b>
 <b>IV.1 Principe de fonctionnement de la technique IGISOL .....</b>	 <b>132</b>
IV.1.1 Conservation de l'état chargé des éléments radioactifs produits.....	133
IV.1.2 Transport des ions radioactifs thermalisés .....	136
IV.1.2.1 Par le flux gazeux.....	136
IV.1.2.2 Par un champ électrique .....	138
IV.1.2.3 Cas particulier du champ magnétique .....	138
IV.1.3 Extraction des ions radioactifs du guide d'ions.....	138
<b>IV.2 Limitations liées à l'utilisation de la technique IGISOL.....</b>	<b>139</b>
IV.2.1 Neutralisation des ions radioactifs produits .....	140
IV.2.2 Masquage du champ électrique par le plasma.....	141
IV.2.3 Effets de charge-espace en sortie du guide d'ions.....	141
<b>IV.3 Bilan fonctionnel qualitatif des ensembles IGISOL suivant le type de réaction nucléaire utilisé pour produire les ions radioactifs .....</b>	 <b>142</b>
IV.3.1 Dans le cas de réactions de fusion-évaporation induites par des faisceaux primaires d'ions légers .....	142
IV.3.2 Dans le cas de réactions de fusion-évaporation induites par des faisceaux primaires d'ions lourds.....	142
IV.3.3 Dans le cas de réactions de fission .....	144
IV.3.4 Dans le cas de réactions de fragmentation .....	145
IV.3.5 Bilan fonctionnel qualitatif de quelques cas particuliers .....	147
IV.3.5.1 Guide d'ions fonctionnant à l'hélium liquide.....	147
IV.3.5.2 Guide d'ions couplé à une ionisation par résonance laser.....	147
<b>IV.4 Reproduction du comportement des ions dans un guide d'ions : réalisation du Code MI-GI-CHEMIN .....</b>	 <b>148</b>

IV.4.1 Nécessité et choix d'un Code .....	148
IV.4.1.1 Simulation du flux gazeux.....	148
IV.4.1.2 Simulation du mouvement des ions dans un guide d'ions incluant des champs électriques .....	149
α) Approche macroscopique .....	150
β) Approche microscopique .....	150
IV.4.1.3 Combinaison des simulations de flux et de mouvement des ions.....	151
IV.4.1.4 Choix d'un Code .....	151
IV.4.2 Vision générale du Code MI-GI-CHEMIN : conception d'un organigramme .....	152
IV.4.3 Description théorique du Code MI-GI-CHEMIN .....	153
IV.4.3.1 Gestion des ions dans le Code .....	153
IV.4.3.2 Propriétés initiales des ions .....	153
α) Détermination de l'état de charge moyen des ions .....	153
β) Détermination de la dispersion en état de charge des ions .....	155
γ) Détermination de la dispersion en énergie des ions.....	156
δ) Autres propriétés initiales des ions .....	158
IV.4.3.3 « Géométrie » du guide d'ions et des lignes de champs électriques et magnétiques.....	159
IV.4.3.4 Détermination du parcours des ions, de haute énergie à basse énergie .....	160
IV.4.3.5 Détermination du « pas de temps » pendant le parcours.....	161
α) Accélération liée au pouvoir d'arrêt.....	161
β) Détermination du pouvoir d'arrêt électronique.....	162
γ) Détermination du pouvoir d'arrêt nucléaire .....	164
δ) Accélération liée aux champs électriques .....	165
ε) Accélération liée aux champs magnétiques.....	166
ξ) Application de la relation fondamentale de la dynamique.....	166
η) Dédution du « pas de temps » pendant le parcours .....	167
IV.4.3.6 Déplacement des ions pendant le parcours.....	168
IV.4.3.7 Détermination du « pas de temps » pendant la phase séquentielle .....	169
α) Application de la relation fondamentale de la dynamique .....	169
β) Dédution du « pas de temps ».....	170
IV.4.3.8 Déplacement des ions pendant la phase séquentielle.....	171
IV.4.3.9 Détermination des propriétés de la collision .....	172
α) Caractère élastique ou inélastique.....	172
β) Cas particulier des diffusions inélastiques.....	173
γ) Détermination des caractéristiques de la diffusion .....	173
IV.4.4 Tests de validation du Code .....	176

<b>Chapitre V : En quête d'un premier prototype IGISOL au GANIL.....</b>	<b>181</b>
<b>V.1 Vision théorique générale du prototype : le choix de la « géométrie » .....</b>	<b>181</b>
V.1.1 Forme théorique du guide d'ions prototype .....	182
V.1.2 Forme théorique des lignes de champ électrique.....	183
V.1.3 Cas particulier du champ magnétique .....	188
V.1.4 Neutralisation par réaction avec des impuretés .....	189
<b>V.2 Premières démarches de développement .....</b>	<b>189</b>
V.2.1 Réalisation de la partie en verre.....	189
V.2.2 Réalisation d'un dépôt résistif pour la création du champ électrique souhaité .....	191
<b>V.3 Perspectives .....</b>	<b>192</b>
<b>Conclusion.....</b>	<b>195</b>
<b>Références bibliographiques.....</b>	<b>199</b>
 <b>Recueil d'annexes :</b>	
<b>Annexe A : Représentation paramétrique de la section efficace totale de réaction.....</b>	<b>213</b>
<b>Annexe B : Diffusion d'éléments radioactifs dans une cible et application à des cas particuliers.....</b>	<b>221</b>
<b>Annexe C : Principe théorique de fonctionnement d'une source d'ions ECR.....</b>	<b>227</b>
<b>Annexe D : Représentation paramétrique du nombre total de réactions nucléaires.....</b>	<b>233</b>
<b>Annexe E : Comparaisons entre une approximation de la vitesse de l'écoulement gazeux dans un guide d'ions et une approximation de la vitesse moyenne induite par un champ électrique.....</b>	<b>237</b>
<b>Annexe F : Extraits du Code MI-GI-CHEMIN.....</b>	<b>243</b>

# INTRODUCTION

La communauté scientifique porte un très grand intérêt à l'étude expérimentale des noyaux radioactifs très éloignés de la vallée de stabilité. En effet, les connaissances acquises (niveaux d'excitations des noyaux, masse, etc.), par l'étude expérimentale des noyaux plutôt proches de la vallée de stabilité, ont permis d'établir des modèles reproduisant les propriétés de ces derniers, mais l'extrapolation de ces modèles aux noyaux très éloignés de cette vallée, proches des « drip-lines », pose problème. De nouvelles propriétés ont été découvertes, comme, par exemple, l'existence de noyaux à halos. Les noyaux radioactifs représentent l'essentiel de la carte des noyaux. Il est donc important de cumuler des données expérimentales sur les noyaux radioactifs afin d'établir des modèles valables pour la globalité des noyaux.

Les physiciens ont besoin de faisceaux d'ions radioactifs suffisamment intenses pour étudier ces derniers. Basée sur une séparation isotopique en ligne de noyaux radioactifs, produits par réaction nucléaire dans une cible à partir d'un faisceau primaire d'ions stables, la méthode ISOL (Isotope Separation On-Line) [Kof-51] permet d'obtenir des faisceaux d'ions radioactifs intenses de très basse énergie. L'utilisation d'une éventuelle post-accélération permet d'utiliser des noyaux radioactifs comme projectiles, ouvrant des possibilités d'études des propriétés dynamiques de ces noyaux ou de celles d'autres noyaux produits par réaction dans la cible. La production de noyaux radioactifs, à partir de ces faisceaux d'ions radioactifs, permet d'explorer des zones encore plus éloignées de la vallée de stabilité.

Depuis le démarrage de SPIRAL (Système de Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne) en Septembre 2001 [Vil-02], le GANIL dispose d'une machine capable de délivrer des faisceaux intenses de gaz rares radioactifs dans la gamme d'énergie de 1,7.A MeV à 24,8.A MeV. Les ions radioactifs, produits par fragmentation dans la cible d'un faisceau primaire d'ions stables, sont arrêtés et neutralisés dans la cible, diffusent hors de celle-ci et effusent jusqu'à une source d'ions où ils sont ionisés à nouveau. Après extraction de la source, le faisceau d'ions radioactifs souhaité est sélectionné et subit une post-accélération par



le cyclotron CIME (Cyclotron pour Ions de Moyenne Energie). Le succès de SPIRAL, depuis son démarrage, place le GANIL au premier rang mondial de la production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL avec accélération en ligne.

Les faisceaux d'ions radioactifs délivrés sur SPIRAL se limitaient aux faisceaux de gaz rares radioactifs, les éléments condensables radioactifs étant perdus par collage sur les parties froides des ensembles cible-source de SPIRAL. L'objectif de cette thèse a été d'étudier la possibilité de produire de nouveaux faisceaux d'ions radioactifs, par la méthode ISOL, au GANIL, en exploitant les faisceaux d'ions stables disponibles actuellement sur cet accélérateur. Cette recherche de nouveaux faisceaux s'est appuyée sur différents aspects de la méthode ISOL et nous a conduits à utiliser différentes solutions techniques, qui prennent en considération les caractéristiques chimiques et le temps de vie des noyaux radioactifs d'intérêt produits.

Une première solution technique consiste à produire des faisceaux d'éléments radioactifs condensables en utilisant un transport sous forme moléculaire volatile dans les zones froides des ensembles cible-source de SPIRAL. Une deuxième solution consiste à supprimer les zones froides des ensembles cible-source : il conduira à la réalisation d'un nouvel ensemble cible-source, dédié à la production des faisceaux d'alcalins radioactifs. Enfin, une troisième solution consiste à éviter la neutralisation des ions radioactifs condensables produits, en les arrêtant dans un gaz, pour éviter le transport jusqu'à une source d'ions afin de les ioniser à nouveau (méthode IGISOL).

Cette thèse s'articule en trois parties :

La première partie (chapitre I) est consacrée aux aspects généraux de la production de faisceaux d'ions radioactifs à partir de la méthode ISOL. Après avoir évoqué les différents mécanismes de réaction nucléaire permettant de produire les ions radioactifs, une description de la méthode ISOL et de ses différents aspects techniques est effectuée (cas d'une cible épaisse, cas d'une cible mince, etc.). Les théories mises en jeu dans des étapes essentielles de la méthode, telles que la diffusion et l'effusion, sont abordées. Le cas particulier du GANIL, avec SPIRAL, est traité. Enfin, une nouvelle méthodologie, la « méthode globale », permettant de caractériser (détermination des coefficients caractéristiques de diffusion, d'effusion, etc.) les ensembles cible-source utilisés pour produire des faisceaux d'ions radioactifs, est développée.

La deuxième partie de cette thèse, constituée de deux chapitres, est consacrée aux techniques ISOL employées au GANIL.

Le chapitre II est consacré à l'étude de la production de faisceaux d'ions radioactifs avec SPIRAL. Tout d'abord, les taux de production de faisceaux de néon radioactif, mesurés quelques mois avant le démarrage de SPIRAL, sont présentés. La « méthode globale », développée dans le chapitre I, est appliquée à l'ensemble cible-source de SPIRAL pour la production des faisceaux de néon radioactif. Dans une seconde partie, les résultats

expérimentaux concernant la recherche de nouveaux faisceaux d'ions radioactifs (oxygène, azote et fluor) avec SPIRAL sont décrits.

Le chapitre III est consacré à un ensemble dédié à la production des faisceaux d'alcalins radioactifs : MONOLITHE. Après avoir décrit le principe de fonctionnement de cet ensemble cible-source, les taux de production mesurés de faisceaux de lithium et de sodium radioactifs sont présentés. Enfin, les résultats obtenus, suite à l'application de la « méthode globale », à l'ensemble cible-source MONOLITHE, pour la production des faisceaux de lithium et de sodium radioactifs, sont détaillés.

La troisième et dernière partie de cette thèse, qui comprend deux chapitres, est consacrée à l'étude d'une nouvelle technique ISOL, au GANIL, pour produire les faisceaux d'ions radioactifs : IGISOL.

Le chapitre IV est consacré à un bilan général de la méthode IGISOL et à la mise au point d'un Code pour analyser le comportement des ions dans l'hélium : MI-GI-CHEMIN. Après avoir expliqué le principe théorique de fonctionnement de cette méthode, les limitations liées à cette technique sont abordées. Un bilan fonctionnel qualitatif, des ensembles IGISOL existant, suivant le type de réaction nucléaire utilisé pour produire les ions radioactifs, est effectué. La nécessité et le choix d'un Code sont ensuite abordés. Enfin, tous les aspects théoriques du Code MI-GI-CHEMIN y sont analysés.

Le chapitre V est consacré à l'étude d'un premier prototype IGISOL au GANIL. Après avoir abordé le choix de la géométrie, les autres aspects théoriques du prototype sont étudiés, grâce aux premières exploitations du Code. Quelques démarches de développement sont présentées et des solutions techniques proposées.

Enfin, une conclusion rappellera les principaux résultats de cette thèse et les perspectives envisagées pour produire de nouveaux faisceaux d'ions radioactifs, par la méthode ISOL, au GANIL.



# CHAPITRE I

## *Aspects généraux de la production de faisceaux d'ions radioactifs à partir de la méthode ISOL*

Cette thèse est consacrée à l'étude de la production de faisceaux d'ions radioactifs à partir de la méthode ISOL (Isotope Separation On-Line) [Kof-51]. L'élaboration de ces faisceaux d'ions radioactifs fait appel à 3 étapes distinctes :

- La production de noyaux radioactifs.
- La constitution d'un faisceau d'ions radioactifs à partir des noyaux radioactifs formés.
- La séparation isotopique du faisceau d'ions radioactifs constitué.

La première étape fait essentiellement intervenir le domaine de la physique nucléaire. Les mécanismes de réaction nucléaire mis en jeu dépendent de la nature et de l'énergie du faisceau primaire utilisé, ainsi que de la nature de la cible. Or, la variété et la quantité des noyaux radioactifs produits dépendent sensiblement du type de réaction utilisé. Il faudra donc favoriser le bon mécanisme de réaction suivant le noyau radioactif souhaité. Dans la première partie de ce chapitre, nous allons décrire les différents mécanismes de réaction qui conduisent à la production de noyaux radioactifs.

La deuxième étape - la constitution d'un faisceau d'ions radioactifs à partir des noyaux radioactifs formés - se présente sous différents aspects suivant les solutions techniques employées (cible épaisse associée à une source d'ionisation, cible mince associée à un jet d'hélium et à une source d'ionisation, ou encore, cible mince associée à un guide d'ions). Cette étape fait appel à de nombreux domaines scientifiques tels que la physique du solide ou encore la physique atomique. Elle est l'objet principal de cette thèse. Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous présenterons les différents aspects de la méthode ISOL et quelques processus théoriques (comme la diffusion ou encore l'ionisation), mis en jeu au cours de la méthode, y seront analysés.

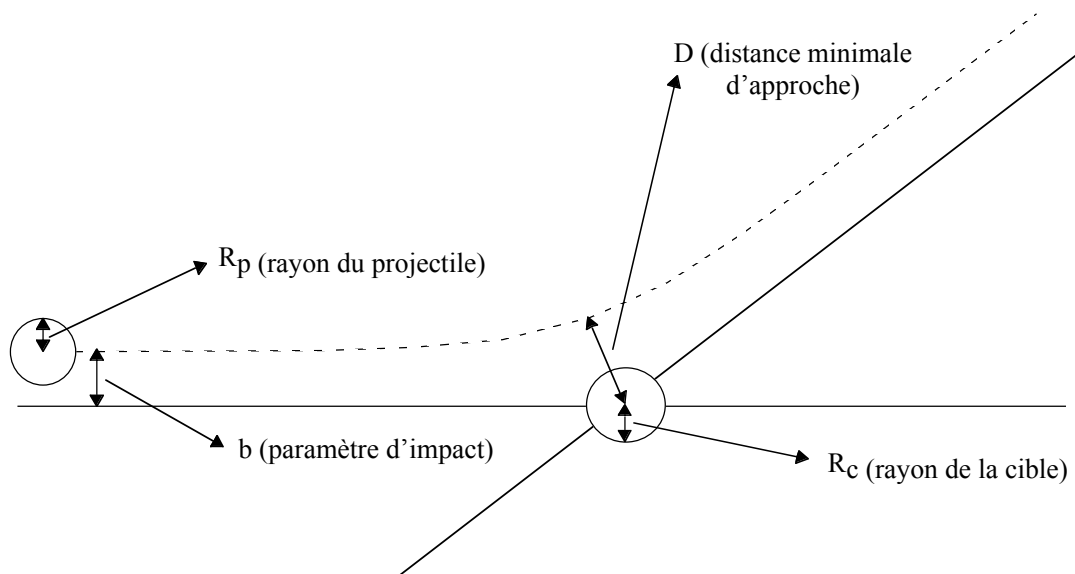
La troisième étape concerne la séparation isotopique (tri selon le rapport "masse fois vitesse sur charge électrique") du faisceau d'ions radioactifs. C'est la dernière étape de la méthode ISOL. Après cette étape, le faisceau d'ions radioactifs peut éventuellement faire l'objet d'une accélération (post-accélération) avant d'être envoyé vers les aires expérimentales.

Dans la troisième partie de ce chapitre, nous nous intéresserons au cas particulier du GANIL (Grand Accélérateur National d'Ions Lourds) [Gan-1]. Les noyaux radioactifs formés à partir des faisceaux primaires du GANIL seront quantifiés par une représentation paramétrique. Les différentes parties du système SPIRAL (Système de Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne) [Spi-02], dédié à la production de faisceaux d'ions radioactifs au GANIL, seront décrites.

Enfin, dans la quatrième et dernière partie de ce chapitre, nous décrirons une nouvelle méthodologie, développée dans le cadre de cette thèse, de caractérisation des ensembles de production de faisceaux d'ions radioactifs : la « méthode globale ».

## **I.1 Les mécanismes de réaction**

La production de noyaux radioactifs, au cours de la méthode ISOL, est effectuée, dans la majorité des cas, en bombardant une cible avec un faisceau de noyaux stables (nous ne considérerons pas le cas de la photofission [Dia-99][Oga-00-a][Oga-00-b][Dia-00]). Le type de réaction nucléaire, se produisant entre un noyau projectile et un noyau cible, dépend de la nature et de l'énergie du projectile, de la nature de la cible et du paramètre d'impact entre le noyau projectile et le noyau cible. Semi-classiquement, ce paramètre d'impact, appelé  $b$ , est représenté dans le référentiel du laboratoire dans la figure I-1.



**Fig. I-1** - Paramètre d'impact dans le référentiel du laboratoire

Suivant cette approche semi-classique, il existe une valeur du paramètre d'impact,  $b_{\max}$ , telle que la distance minimale d'approche entre le noyau projectile et le noyau cible soit égale à  $R_p$  (rayon du noyau projectile) +  $R_c$  (rayon du noyau cible). C'est-à-dire, pour toutes

valeurs de  $b$  telles que  $b \leq b_{\max}$ , on aura une collision nucléaire entre le noyau projectile et le noyau cible ( $D \leq R_p + R_c$ ). La section efficace totale de réaction est directement liée à la valeur de  $b_{\max}$ .

### I.1.1 Section efficace totale de réaction

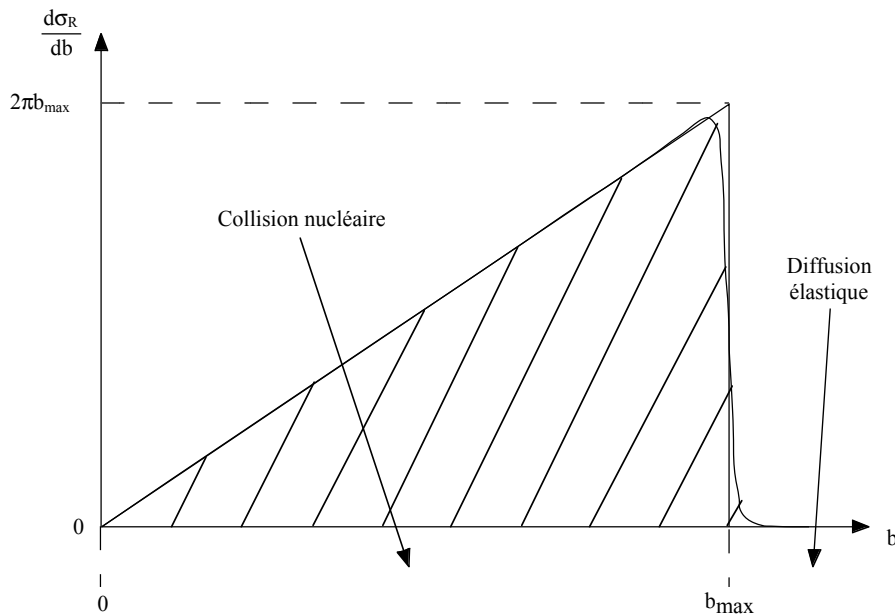
Une représentation paramétrique de la section efficace totale de réaction,  $\sigma_R$ , est établie en **annexe A** (cf. équation A-21). Elle montre bien que la section efficace totale de réaction dépend de la nature et de l'énergie du projectile et de la nature de la cible. La représentation géométrique du paramètre d'impact (cf. figure I.1) permet de déduire que la section efficace totale de réaction représente la surface d'un disque de rayon  $b_{\max}$ , soit :

$$\sigma_R = \pi(b_{\max})^2 \quad (\text{I-1})$$

Dans le cadre de cette interprétation géométrique, la section efficace totale différentielle de réaction, au paramètre d'impact  $b$ , peut être exprimée de la manière suivante :

$$d\sigma_R = (2\pi b)db \quad (\text{I-2})$$

Une représentation géométrique de cette équation est effectuée dans la figure I-2. La section efficace totale différentielle de réaction, au paramètre d'impact  $b$ , est proportionnelle à  $b$ . La valeur limite maximale,  $b_{\max}$ , du paramètre d'impact (pas de collision nucléaire si  $b$  est supérieur à  $b_{\max}$ ) n'est pas aussi nette que le prévoit la représentation géométrique (la réalité est mieux représentée par la zone hachurée). Enfin, pour des valeurs de  $b$  supérieures à  $b_{\max}$ , seule la diffusion élastique est observée.

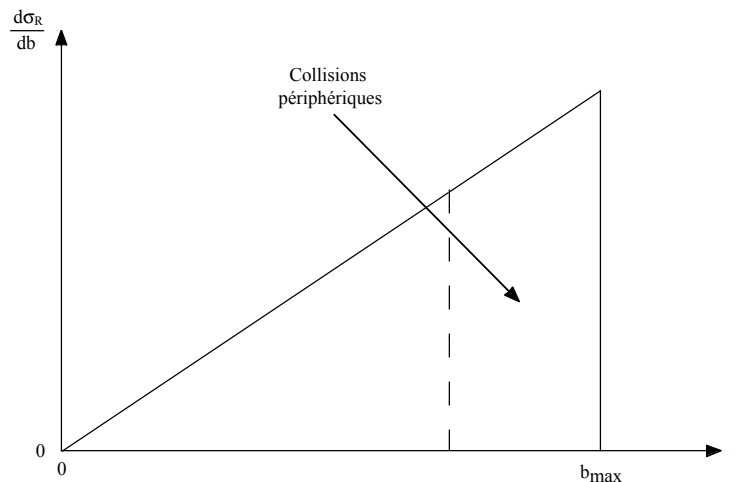


**Fig. I-2** - Représentation géométrique de la section efficace totale différentielle de réaction au paramètre d'impact  $b$

Nous allons, par la suite, utiliser cette représentation géométrique pour classer les différents mécanismes de réaction.

### I.1.2 Les collisions périphériques

La figure I-3 donne une représentation géométrique des collisions périphériques. Elles correspondent à des grandes valeurs du paramètre d'impact.



**Fig. I-3** - Représentation géométrique des collisions périphériques

On distingue deux types de processus suivant l'énergie du projectile :

- **Collisions périphériques à basse énergie :  $E_p/A_p < 10$  MeV/nucléon**

Ce sont les **phénomènes collectifs** qui dominent : l'ensemble des constituants du noyau projectile interagit avec l'ensemble des constituants du noyau cible (phénomènes dominés par des effets de champ moyen). On distingue essentiellement :

La **diffusion quasi-élastique** : cette réaction conduit à une conservation de la nature du projectile et de la cible. Seule une légère diminution de l'énergie cinétique est observée. Ce type de réaction ne permet pas de produire des noyaux radioactifs.

Les **transferts quasi-élastiques** : le projectile et la cible échangent un ou plusieurs nucléons. Cependant, la vitesse du projectile est peu modifiée. Ce type de réaction permet de produire des noyaux radioactifs très proches des noyaux projectile et cible.

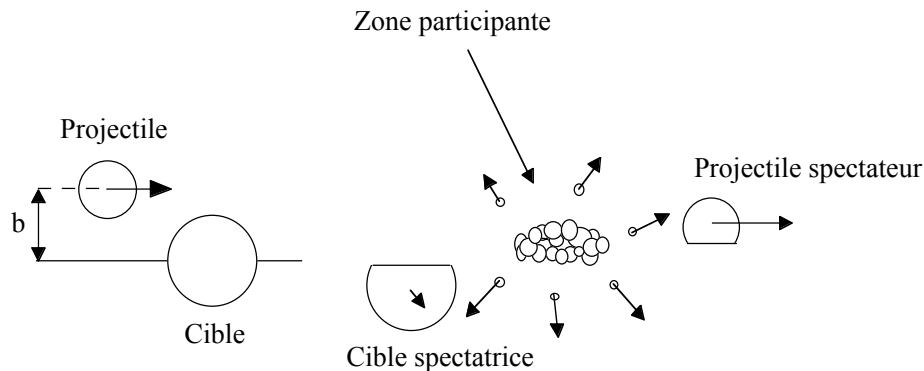
- **Collisions périphériques à énergie relativiste :  $E_p/A_p >$  plusieurs centaines de MeV/nucléon**

Ce sont les **phénomènes individuels** qui dominent : les réactions nucléaires sont régies par des collisions nucléon-nucléon.

Le processus observé est la **fragmentation** du projectile et de la cible. Ce processus fait apparaître une zone dite "participante", qui correspond à un recouvrement des densités de matière nucléaire du projectile et de la cible pendant la collision. Il fait apparaître également

deux zones dites "spectatrices", qui correspondent à la partie du projectile et celle de la cible qui n'ont pas interagi. Le processus est schématisé géométriquement, dans la figure I-4, par le modèle appelé "participant-spectateur". L'intérêt de ce type de réaction est de pouvoir former des noyaux radioactifs très différents (en nombre de protons ou de neutrons) des noyaux d'origine (projectile et cible). Il permet de former des noyaux radioactifs très loin de la stabilité.

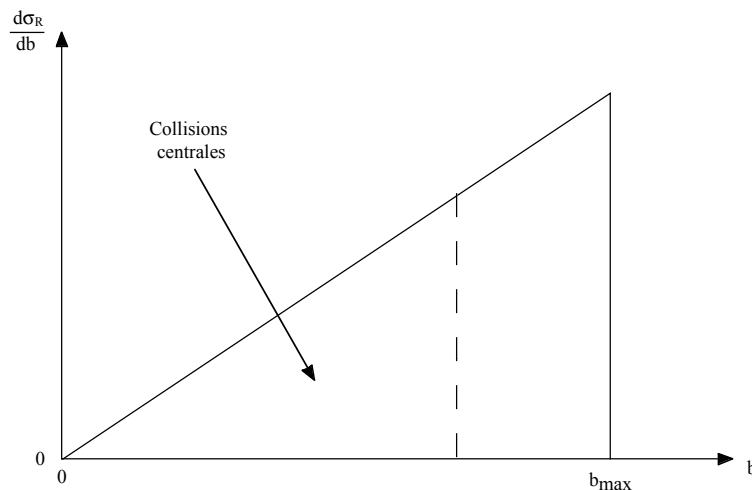
- Pour des énergies intermédiaires, les deux types de processus sont observés. Nous qualifierons donc cette région comme celle de transition.



**Fig. I-4** - Définition du modèle d'abrasion (modèle "participant-spectateur")

### I.1.3 Les collisions centrales

Ces collisions correspondent à des petites valeurs du paramètre d'impact, comme il est indiqué sur la figure I-5. Les collisions entre le projectile et la cible sont donc très violentes.



**Fig. I-5** - Représentation géométrique des collisions centrales

- **Collisions centrales à basse énergie :  $E_p/A_p < 10$  MeV/nucléon**

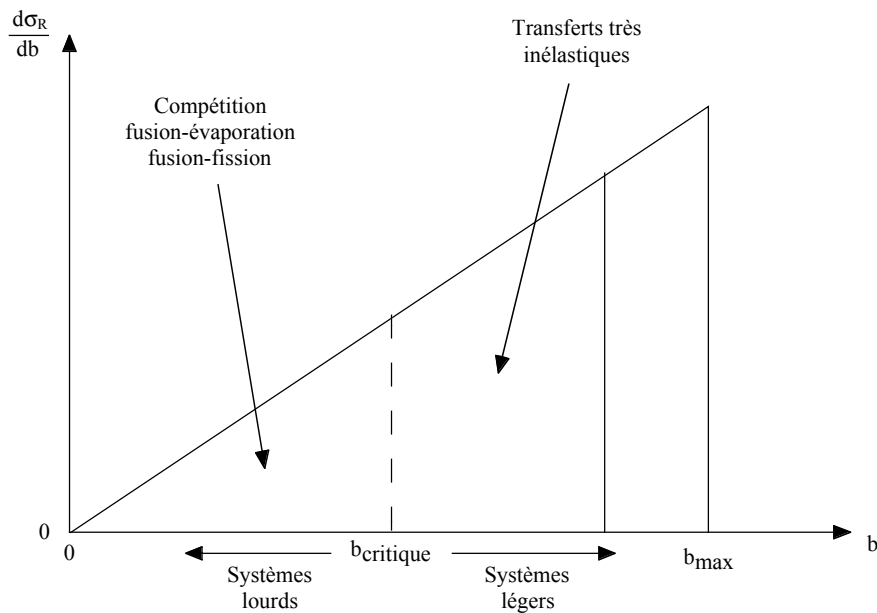
On distingue deux types de réaction : les **transferts très inélastiques** et la **fusion**. Ces deux processus, comme le montre la figure I-6, ne correspondent pas au même domaine du



paramètre d'impact. La fusion correspond aux paramètres d'impact les plus faibles, c'est-à-dire, aux collisions les plus centrales. De plus, on peut définir un paramètre d'impact critique,  $b_{\text{crit}}$ , qui représente la frontière entre les deux types de collision. Plus le système projectile-cible est lourd, plus la valeur de  $b_{\text{crit}}$  tend vers zéro. En d'autres termes, la compétition "transfert très inélastique"-fusion tend en faveur du transfert très inélastique lorsque le système projectile-cible devient plus lourd.

Les transferts très inélastiques sont accompagnés d'une très forte perte d'énergie, d'où le nom donné à la collision. Ce type de réaction, appelé également « quasi-fission », conduit à la formation de deux fragments dont la nature n'est pas très éloignée de celle du projectile et de la cible : le « quasi-projectile » et la « quasi-cible ». Il permet de former des noyaux radioactifs ayant gardé « mémoire » de la nature du projectile et de la cible.

La fusion se caractérise par la formation d'un noyau composé (contrairement au transfert très inélastique). Ce noyau composé se désexcite, soit par évaporation de particules légères, soit par fission. On parle alors de processus de **fusion-évaporation** pour le premier cas et de processus de **fusion-fission** pour le second. Ces deux processus sont en compétition. Le processus de fusion-évaporation conduit à la formation de noyaux radioactifs lourds riches en protons. Le processus de fusion-fission conduit à la formation de deux fragments de nature complètement différente de celle du projectile et de la cible.



**Fig. I-6 - Collisions centrales à basse énergie**

• **Collisions centrales à énergie intermédiaire :  $10 \text{ MeV/nucléon} < E_p/A_p < 100 \text{ MeV/nucléon}$**

La **fragmentation** est le processus majoritaire dans cette gamme d'énergie. Elle devient de la **multifragmentation** pour les paramètres d'impact les plus faibles. Cette multifragmentation est un processus qui conduit à la formation d'au moins trois gros fragments. Ce type de réaction permet de former des noyaux radioactifs possédant au plus quelques dizaines de nucléons.

- **Collisions centrales à haute énergie :  $E_p/A_p > 100$  MeV/nucléon**

La **multifragmentation** est maintenant le processus dominant. Dans le cas particulier où une très forte asymétrie de masse existe entre le projectile et la cible, la collision peut provoquer une forte émission de particules légères par évaporation, ces particules étant essentiellement des neutrons. On parle alors de **spallation**. Ce type de réaction permet la formation de noyaux radioactifs riches en protons.

Pour conclure, nous avons classifié, dans la première partie de ce chapitre, les différents mécanismes de réaction nucléaire en fonction du paramètre d'impact et de l'énergie du projectile. Cette présentation sommaire indique que les noyaux radioactifs peuvent être créés par des couples projectile-cible et à des énergies incidentes très différents. Chaque type de mécanisme présente des avantages et des inconvénients et est plus ou moins approprié pour la production de noyaux radioactifs d'une région ou d'une autre de la table des isotopes. Nous allons maintenant nous intéresser à l'exploitation des noyaux radioactifs produits pour constituer des faisceaux d'ions radioactifs à partir de la méthode ISOL. La suite de ce chapitre est donc consacrée à la description de la méthode ISOL.

## **I.2 La méthode ISOL**

Nous avons déjà précisé, au début de ce chapitre, que cette thèse est consacrée à l'étude de la production de faisceaux d'ions radioactifs à partir de la méthode ISOL (Isotope Separation On-Line). Maintenant que nous avons évoqué les mécanismes de réaction qui conduisent à la formation de noyaux radioactifs, nous allons décrire les différents aspects techniques et théoriques de la méthode ISOL qui conduisent à la formation de faisceaux d'ions radioactifs.

Pour cela, il faut, tout d'abord, avoir une vue d'ensemble de la méthode ISOL, car il existe plusieurs possibilités techniques, basées sur la séparation isotopique en ligne, pour produire des faisceaux d'ions radioactifs [Ben-01]. Cette vue d'ensemble est représentée dans la figure I-7.

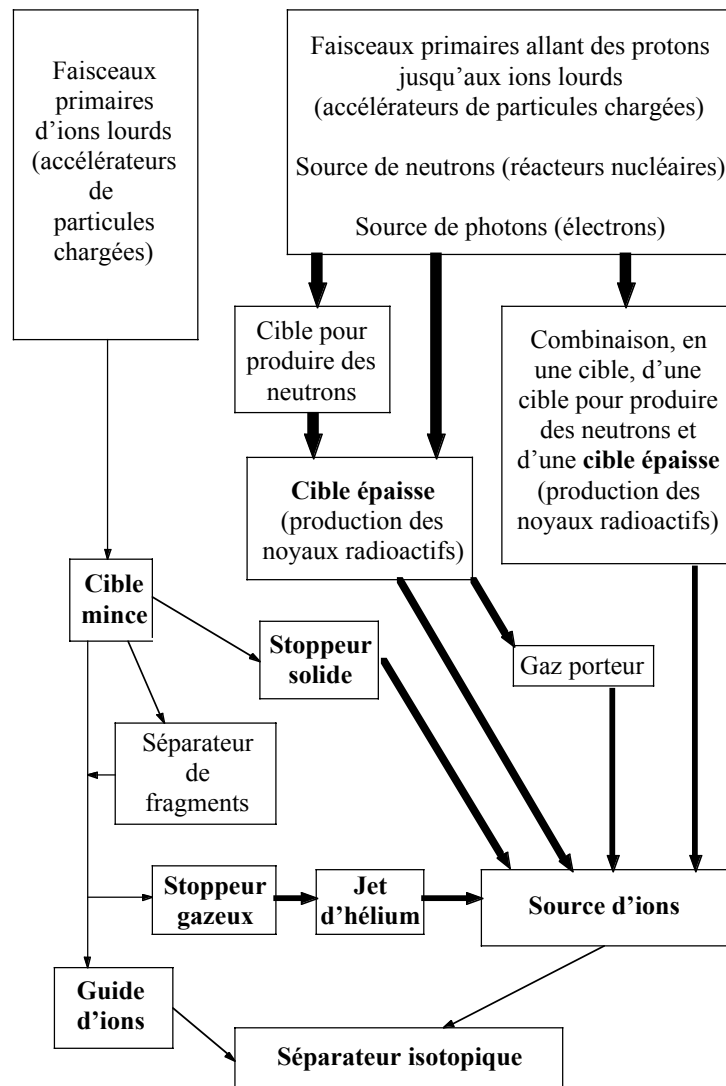
Si on fait abstraction de la réaction utilisée pour produire les noyaux radioactifs, quatre techniques différentes apparaissent sur la vue d'ensemble de la méthode ISOL. On distingue les techniques suivantes :

- « cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique ».
- « cible mince – stoppeur solide – source d'ions – séparateur isotopique ».
- « cible mince – stoppeur gazeux – jet d'hélium – source d'ions – séparateur isotopique ».
- « cible mince – guide d'ions – séparateur isotopique ».

Les deux premières techniques sont souvent regroupées ensemble, car, comme nous le verrons par la suite, elles reposent sur les mêmes processus théoriques. La troisième technique

est appelée « technique du jet d'hélium ». Enfin, la dernière technique est plus connue sous le nom « IGISOL » (Ion Guide Isotope Separator On-Line).

Pour chacune de ces techniques basées sur la méthode ISOL, nous allons détailler les aspects théoriques qui sont à prendre en considération et qui peuvent influencer sur la qualité et la quantité des faisceaux d'ions radioactifs produits.



**Fig. I-7** – Vue d'ensemble de la méthode ISOL [Ben-01]. Les faisceaux primaires sont symbolisés par les flèches les plus épaisses, les faisceaux d'ions par celles les plus minces et enfin, les faisceaux neutres par celles de largeur intermédiaire. Les termes en gras représentent les équipements clefs de la méthode

### **I.2.1 La technique « cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique »**

On remarque, sur la vue d'ensemble de la méthode ISOL (cf. figure I-7), que de nombreuses méthodes de production des ions radioactifs sont utilisables à partir de cette technique utilisant une cible épaisse. Nous ne nous attarderons pas sur ces différentes

méthodes de production des ions radioactifs qui ont déjà été évoquées dans la première partie de ce chapitre.

Le terme "cible épaisse" signifie que les ions radioactifs produits, qui nous intéressent, sont arrêtés dans la cible. Cela ne veut pas dire que le faisceau primaire est forcément arrêté dans cette cible. L'endroit où s'arrête, dans la cible, un ion radioactif produit dépend de l'endroit où a été produit cet ion, de l'énergie de cet ion au moment de sa production et enfin de la nature de l'ion et de la cible [Nor-70]. De plus, l'arrêt d'un ion radioactif dans une cible solide s'accompagne, inévitablement, de sa neutralisation. Par conséquent, ce ne sont pas des ions radioactifs qui sortent de la cible, mais des atomes radioactifs. Le premier aspect théorique, à prendre en considération, est la sortie, de la cible, des atomes radioactifs produits. Le processus physique mis en jeu est le processus de diffusion. Nous allons donc détailler les aspects théoriques de la diffusion.

### **I.2.1.1 Diffusion des atomes radioactifs produits**

La diffusion d'un atome dans un solide est un processus aléatoire, dépendant de la température du milieu, faisant intervenir les interstices (sites tétraédriques et sites octaédriques) et les défauts du milieu cristallin [Ger-76]. La seule énergie que possède l'atome qui diffuse est son énergie thermique (équilibre statistique à  $0,5k_B T$  fois le nombre de degré de liberté de l'atome). Cela explique pourquoi le processus de diffusion est dépendant de la température : plus la température du milieu est élevée, plus l'atome diffusant a une énergie thermique suffisante pour pouvoir passer d'un site à un autre (l'atome doit franchir, à chaque déplacement, l'équivalent d'une barrière de potentiel). Le but étant d'obtenir des intensités de faisceaux d'ions radioactifs les plus élevées possibles, il est important de connaître, en régime permanent, la proportion des atomes radioactifs diffusant hors de la cible avant leur décroissance radioactive (cette proportion représente l'efficacité de diffusion).

La théorie de la diffusion d'éléments radioactifs dans une cible est développée en **annexe B**. Les paramètres du processus de diffusion sont les suivants :

- Le coefficient d'Arrhenius  $E_a$  (en eV). Il représente l'énergie d'activation pour un déplacement de l'atome radioactif qui diffuse. Ce paramètre traduit la notion de barrière de potentiel à franchir. Plus  $E_a$  est élevée, plus le déplacement de l'atome est difficile.
- Le coefficient d'Arrhenius  $D_0$  (en  $m^2s^{-1}$ ), appelé "facteur de fréquence". Il est dépendant des paramètres de la maille cristalline et de la fréquence de vibration de l'atome qui diffuse. Plus  $D_0$  est élevé, plus la diffusion est rapide.
- Le coefficient de diffusion  $D$  (en  $m^2s^{-1}$ ). Il est défini à partir des deux coefficients d'Arrhenius ( $E_a$  et  $D_0$ ) et de la température  $T$  de la cible. Il traduit la rapidité de la diffusion quelles que soient les valeurs de  $E_a$ ,  $D_0$  et  $T$  : plus le coefficient de diffusion  $D$  est élevé, plus la diffusion est rapide. Ce coefficient est un moyen de comparer la rapidité de la diffusion pour différents systèmes « atome diffusant – milieu diffuseur – température » ( $E_a$ ,  $D_0$  et  $T$  fixés pour chaque système). Il est exprimé de la manière suivante [Lan-70] :

$$D = D_0 e^{\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right)} \quad (\text{I-3})$$

Quelques valeurs des coefficients d'Arrhenius ( $E_a$  et  $D_0$ ) et du coefficient de diffusion  $D$ , déduites de mesures expérimentales, sont rassemblées dans le tableau I-1. Pour une même température du milieu diffuseur (2000 K ou 2500 K), le coefficient de diffusion (sous la forme  $\log(D)$ ) est plus élevé pour la diffusion du strontium dans du tantale, que dans du tungstène ou dans du rhénium. Il est également plus élevé pour la diffusion du plomb dans du carbone (graphite) que dans du tantale. Cependant, les écarts pour 2000 K et pour 2500 K sont différents. Et si on pouvait augmenter indéfiniment la température, le coefficient de diffusion deviendrait plus élevé pour la diffusion du strontium dans du tungstène, que dans du tantale ou dans du rhénium. Mais pour ne pas détériorer la cible par évaporation, des températures inférieures à 2500 K doivent être utilisées.

atome diffusant	milieu diffuseur	$T_{\text{fusion}}$ du milieu diffuseur	$\log(D_0)$ en $\text{cm}^2\text{s}^{-1}$	$E_a$ en eV	$\log(D)$ en $\text{cm}^2\text{s}^{-1}$ à 2000 K	$\log(D)$ en $\text{cm}^2\text{s}^{-1}$ à 2500 K	référence
Ar ( $Z = 18$ )	C (PT-2318) [Car-95]	3925 K	- 3,6 (0,5)	2,4 (0,2)	- 9,6 (0,7)	- 8,4 (0,6)	[Mau-98]
Ar ( $Z = 18$ )	C (ZXF-5Q1) [Poc-99]	3925 K	4,6 (0,8)	5,4 (0,3)	- 9,0 (1,1)	- 6,3 (1,0)	[Lan-01]
Pb ( $Z = 82$ )	C (PT-5890) [Car-95]	3925 K	- 6,5 (0,3)	0,88 (0,05)	- 8,7 (0,3)	- 8,3 (0,3)	[Kir-92]
Pb ( $Z = 82$ )	Ta	3269 K	- 0,9 (0,4)	3,8 (0,2)	- 10,5 (0,6)	- 8,6 (0,6)	[Kir-92]
Sr ( $Z = 38$ )	Ta	3269 K	0,00 (0,33)	4,2 (0,2)	- 10,6 (0,6)	- 8,5 (0,5)	[Kir-92]
Sr ( $Z = 38$ )	W	3683 K	1,00 (0,14)	5,4 (0,1)	- 12,6 (0,3)	- 9,9 (0,2)	[Kir-92]
Sr ( $Z = 38$ )	Re	3453 K	0,0 (0,5)	4,6 (0,3)	- 11,6 (0,9)	- 9,3 (0,8)	[Kir-92]

**Tab. I-1** - Coefficients d'Arrhenius ( $E_a$  et  $D_0$ ) et coefficient de diffusion ( $D$ ) déduits de différentes mesures expérimentales

Dans le cas de la diffusion de l'argon dans du carbone (graphite), on obtient deux résultats différents, pour les coefficients  $E_a$  et  $D_0$ , suivant l'origine industrielle du carbone (Carbone Lorraine [Car-95] pour le premier et POCO Graphite [Poc-99] pour le second). Si le milieu diffuseur était constitué uniquement de graphite, cela ne devrait pas être le cas. Ce problème a été mis à jour dans la thèse de F. Landré-Pellemoine [Lan-01]. Les deux cibles utilisées sont constituées de grains de carbone. La cohésion entre ces grains est assurée par la présence d'un liant, dont la constitution semble différée suivant le fabricant (la composition

du liant est malheureusement un secret industriel). Il faut donc faire très attention à l'origine du matériau diffuseur utilisé, car les coefficients d'Arrhenius peuvent être complètement différents suivant l'origine industrielle du matériau.

L'efficacité de diffusion,  $\xi_{\text{diff}}$ , en régime permanent, pour quelques cas particuliers, est établie en **annexe B**. Pour la diffusion d'un élément radioactif de constante radioactive  $\lambda$ , produit avec un **taux constant et homogène**, sans modification de la structure cristalline au cours du temps ( $D_0$  et  $E_a$  constants) et avec une température **T constante**, on obtient le résultat suivant :

- hors d'une **sphère** de rayon  $\rho$  :

$$\xi_{\text{diff}} = \frac{6}{\pi^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{k^2 + \frac{\lambda}{\mu_0}} = 3 \frac{\left( \sqrt{\frac{\pi^2 \lambda}{\mu_0}} \coth \left( \sqrt{\frac{\pi^2 \lambda}{\mu_0}} \right) - 1 \right)}{\frac{\pi^2 \lambda}{\mu_0}} \quad (\text{I-4})$$

$$\text{avec} \quad \mu_0 = \frac{\pi^2 D_0 e^{\left( -\frac{E_a}{k_B T} \right)}}{\rho^2} \quad (\text{en s}^{-1}) \quad (\text{I-5})$$

- hors d'une **feuille** aux dimensions infinies et de demi-épaisseur  $\rho$  :

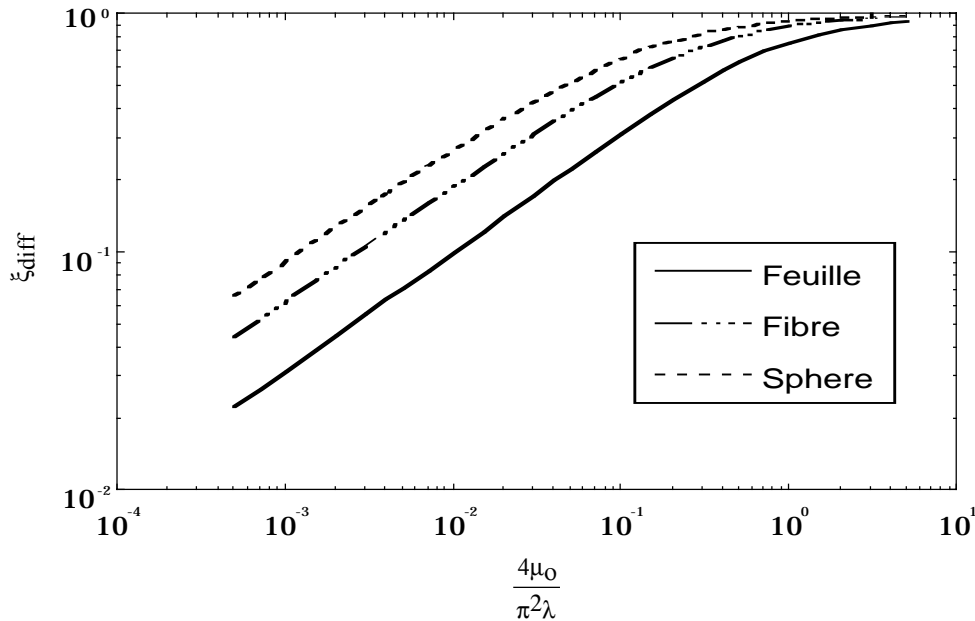
$$\xi_{\text{diff}} = \frac{8}{\pi^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{(2k+1)^2 + \frac{\lambda}{\mu_0}} = \frac{\tanh \left( \sqrt{\frac{\pi^2 \lambda}{4\mu_0}} \right)}{\sqrt{\frac{\pi^2 \lambda}{4\mu_0}}} \quad (\text{I-6})$$

où  $\mu_0$  est défini par l'équation I-5.

L'efficacité de diffusion hors d'une sphère (cf. équation I-4) a également été calculée par J. Cranck [Cra-75], L. C. Carraz [Car-78], M. Fujioka [Fuj-81] et R. Kirchner [Kir-92] et celle hors d'une feuille (cf. équation I-6) par M. Fujioka [Fuj-81]. Dans tous les cas, les résultats sont compatibles entre eux.

Des mesures expérimentales d'efficacité de diffusion [Mau-98][Lan-01], effectuées au GANIL pour des cibles constituées de grains (ces derniers étant assimilés à des sphères), ont montré que l'efficacité de diffusion calculée, dans le cas d'une sphère, est en bon accord avec les données expérimentales (cf. figure III-10 de la thèse de F. Landre-Pellemoine [Lan-01]). Les cibles de diffusion utilisées au cours de cette thèse sont également des cibles constituées de grains. C'est pourquoi, l'efficacité de diffusion hors d'une sphère, établie par l'équation I-4, est utilisée tout au long de cette thèse.

Il est intéressant de comparer les efficacités de diffusion pour trois cas particuliers : cas d'une sphère de rayon  $\rho$ , cas d'une fibre de longueur infinie et de rayon  $\rho$  et cas d'une feuille aux dimensions infinies et de demi-épaisseur  $\rho$ . Cette comparaison a été effectuée par Fujioka [Fuj-81]. Elle est exposée dans la figure I-8. L'efficacité de diffusion est représentée en fonction du paramètre, sans unité,  $4D_0 e^{(-E_a/k_B T)} / \lambda \rho^2$ . Par conséquent, pour une abscisse donnée, la comparaison est effectuée pour le même atome radioactif ( $\lambda$  constant), le même matériau ( $D_0$  et  $E_a$  constants) et la même température ( $T$  constante). Seule la géométrie diffère, car même l'épaisseur minimale  $\rho$  à traverser, à partir du centre, est identique.



**Fig. I-8** - Comparaison entre l'efficacité de diffusion d'un atome radioactif, de constante radioactive  $\lambda$ , dans une sphère de rayon  $\rho$ , celle dans une fibre de longueur infinie et de rayon  $\rho$  et celle dans une feuille aux dimensions infinies et de demi-épaisseur  $\rho$

Cette comparaison montre que l'efficacité de diffusion dans une sphère est meilleure que celle dans une fibre ou encore que celle dans une feuille. Du point de vue de la diffusion uniquement, il est donc plus judicieux de prendre une cible avec une structure en grains (sphères), plutôt qu'une cible constituée de fibres, ou encore de feuilles empilées. Cependant, la comparaison entre ces différentes cibles n'est pas aussi évidente que cela, car d'autres paramètres importants sont à prendre en considération :

- la diffusion de l'atome radioactif dans le matériau utilisé pour joindre les grains, les fibres ou les feuilles. Bien que ce matériau doit être présent, à priori, en quantité beaucoup plus faible, le fait qu'il soit de nature ou de structure différente engendre de nouveaux coefficients d'Arrhenius pour la diffusion dans ce matériau (et si la cible a une structure en grains, ce matériau a très peu de chance d'avoir une structure en grains puisque c'est un liant).
- le temps passé, par l'atome radioactif, dans les porosités de la cible. Le phénomène physique mis en jeu, dans ce déplacement, s'appelle l'effusion et sera abordé par la suite. Pour que la porosité de la cible soit bénéfique à la sortie des atomes radioactifs,

il faut que cette porosité donne un accès à l'extérieur de la cible. On parle alors de "porosité ouverte". Cependant, cette porosité ouverte ne doit pas être trop importante, pour que la probabilité qu'un atome radioactif retourne dans la cible, par un "trou", soit faible.

Le paramètre  $4D_0e^{(-E_a/k_B T)}/\lambda\rho^2$  utilisé comme abscisse pour la figure I-8 permet de comprendre que, pour des températures suffisamment élevées et quelle que soit la structure utilisée (sphère, fibre ou feuille), l'efficacité de diffusion atteint un plateau dont la valeur est fixée par l'abscisse  $4D_0/\lambda\rho^2$ . Des efficacités de diffusion (valeurs du plateau), déduites de plusieurs mesures expérimentales [Mau-98][Lan-01] de diffusion de l' $^{35}\text{Ar}$  dans des cibles en carbone constituées de grains, sont exposées dans le tableau I-2. Même pour des noyaux radioactifs d'argon à temps de vie très court, l'efficacité de diffusion atteint une valeur de 100 % au plateau.

milieu diffuseur	Log( $D_0$ ) expérimental pour l'Ar en $\text{cm}^2\text{s}^{-1}$	rayon $\rho$ du grain en cm	efficacité de diffusion expérimentale au plateau pour l' $^{35}\text{Ar}$ ( $T_{1/2} = 1,77 \text{ s}$ )	efficacité de diffusion théorique au plateau pour l' $^{32}\text{Ar}$ ( $T_{1/2} = 98 \text{ ms}$ )	efficacité de diffusion théorique au plateau pour l' $^{31}\text{Ar}$ ( $T_{1/2} = 15 \text{ ms}$ )
C (PT-2318) [Car-95]	- 3,6 (0,5) [Mau-98]	$2,0 \cdot 10^{-4}$	100 %	100 %	100 %
C (ZXF-5Q1) [Poc-99]	4,6 (0,8) [Lan-01]	$0,5 \cdot 10^{-4}$	100 %	100 %	100 %

**Tab. I-2** – Efficacités de diffusion (valeurs du plateau) déduites de mesures expérimentales [Mau-98][Lan-01] de diffusion de l' $^{35}\text{Ar}$  dans des cibles en carbone constituées de grains

Pour conclure en ce qui concerne la diffusion dans une cible en grains, en fibres ou en feuilles, cinq paramètres fondamentaux sont à prendre en considération :

- Les deux coefficients d'Arrhenius  $D_0$  et  $E_a$ . Ces deux coefficients dépendent du couple "atome qui diffuse - cible" utilisé. Modifier le matériau, ou la structure cristalline, de la cible, ou encore modifier la nature de l'atome diffusant (modification du Z), revient à modifier les deux coefficients d'Arrhenius. Il faut donc prendre en considération les coefficients d'Arrhenius de la cible et ceux du liant (si la structure ou le matériau est différent).
- Le rayon  $\rho$  qui correspond au rayon des grains pour une cible en grains, au rayon des fibres pour une cible en fibres et à la demi-épaisseur des feuilles pour une cible en feuilles. Plus la valeur de  $\rho$  est faible, plus l'efficacité de diffusion hors d'un grain, d'une fibre ou d'une feuille, est élevée.
- La demi-vie  $T_{1/2}$  de l'atome radioactif qui diffuse. Plus la demi-vie de l'atome radioactif est faible, plus l'efficacité de diffusion est mauvaise. Cependant, nous ne pouvons



pas jouer sur ce paramètre, car le but, que nous recherchons, est de produire des faisceaux d'ions radioactifs suffisamment intenses pour chacun des éléments radioactifs qui existent. Il faut donc plutôt travailler avec un atome radioactif donné et jouer sur les quatre autres paramètres.

- La température  $T$  de la cible. Plus la température de la cible est élevée, plus l'efficacité de diffusion est élevée. Cependant, on ne peut pas augmenter indéfiniment la température de la cible, car il ne faut pas la détériorer. Il s'agira donc de trouver un compromis, c'est-à-dire, trouver la température maximale telle que la détérioration de la cible soit totalement négligeable. Une autre difficulté réside dans le fait que la température de la cible n'est jamais uniforme (c'est une considération utopique). Par conséquent, la diffusion de l'atome radioactif est plus ou moins rapide suivant l'endroit où il se trouve. Il est important, tout de même, de chercher à uniformiser, le mieux possible, la température de la cible afin que la température du point le plus froid soit la plus proche possible de la température maximale (température du point le plus chaud) que la cible peut supporter sans détérioration.

Nous avons maintenant fini de traiter le cas théorique de la diffusion, qui intervient pour la sortie de la cible des atomes radioactifs produits. L'étape fondamentale suivante, qui intervient dans la technique, basée sur la méthode ISOL, « cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique » (cf. figure I-7), est le trajet des atomes radioactifs jusqu'à la source d'ionisation. Cette étape repose sur le principe théorique de l'effusion. Nous allons donc expliquer ce que représente le processus de l'effusion et pourquoi il intervient ici.

### **I.2.1.2 Effusion des atomes radioactifs produits**

En sortie de cible, les atomes radioactifs ont pour seule énergie leur énergie thermique. Ils poursuivent leur trajectoire en ligne droite jusqu'à rencontrer une paroi. Ils pénètrent alors dans les couches atomiques superficielles de la paroi, avant d'être émis et de repartir à nouveau en ligne droite jusqu'au prochain obstacle. Ce phénomène de propagation s'appelle l'effusion. De ce processus d'effusion ressortent plusieurs paramètres fondamentaux :

- Le nombre moyen de collisions,  $\chi$ , entre la sortie de la cible et l'entrée dans la source d'ions. Ce paramètre dépend de la configuration géométrique de l'ensemble cible-source utilisé.
- Le temps de vol moyen,  $\tau_{vol}$ , entre deux collages sur des parois. Il est défini par la distance moyenne parcourue entre deux collages,  $D_{vol}$ , et par la vitesse thermique de l'élément effusant. Il s'exprime, pour des éléments monoatomiques, suivant la loi :

$$\tau_{vol} = D_{vol} \sqrt{\frac{m}{3k_B T}} \quad (I-7)$$

où  $m$  représente la masse de l'élément effusant et  $T$ , la température à laquelle il est thermalisé. Quelques valeurs du temps de vol moyen sont représentées dans le tableau I-3 pour différents noyaux, différentes températures et différentes distances moyennes parcourues entre deux collages. Le temps de vol moyen reste dans le même ordre de grandeur si on ne

fait varier que la masse de l'élément effusant (le rapport évolue suivant la racine carrée du rapport des masses). C'est également la même chose si on ne fait varier que la température (le rapport évolue suivant la racine carrée du rapport des températures). Par contre, le temps de vol moyen est plus sensible à la distance moyenne parcourue entre deux collages (le rapport évolue suivant le rapport des distances). Cette distance moyenne dépend de la configuration géométrique de l'ensemble cible-source utilisé.

élément	D <sub>vol</sub> (en cm)	T (en K)	$\tau_0$ pour des parois en tantale (en s) [Kir-87-a]	$\Delta H_a$ pour des parois en tantale (en eV) [Kir-92]	$\tau_{vol}$ (en s)	$\tau_{collage}$ (en s)
<sup>7</sup> Li	1	293	$2,4 \cdot 10^{-15}$	3,6	$9,8 \cdot 10^{-6}$	$2,0 \cdot 10^{47}$
<sup>7</sup> Li	1	2000	$2,4 \cdot 10^{-15}$	3,6	$3,7 \cdot 10^{-6}$	$2,8 \cdot 10^{-6}$
<sup>7</sup> Li	10	293	$2,4 \cdot 10^{-15}$	3,6	$9,8 \cdot 10^{-5}$	$2,0 \cdot 10^{47}$
<sup>7</sup> Li	10	2000	$2,4 \cdot 10^{-15}$	3,6	$3,7 \cdot 10^{-5}$	$2,8 \cdot 10^{-6}$
<sup>57</sup> Fe	1	293	$2,4 \cdot 10^{-15}$	5,4	$2,8 \cdot 10^{-5}$	$1,8 \cdot 10^{78}$
<sup>57</sup> Fe	1	2000	$2,4 \cdot 10^{-15}$	5,4	$1,1 \cdot 10^{-5}$	$9,7 \cdot 10^{-2}$
<sup>57</sup> Fe	10	293	$2,4 \cdot 10^{-15}$	5,4	$2,8 \cdot 10^{-4}$	$1,8 \cdot 10^{78}$
<sup>57</sup> Fe	10	2000	$2,4 \cdot 10^{-15}$	5,4	$1,1 \cdot 10^{-4}$	$9,7 \cdot 10^{-2}$
<sup>109</sup> Ag	1	293	$2,4 \cdot 10^{-15}$	3,3	$3,9 \cdot 10^{-5}$	$1,4 \cdot 10^{42}$
<sup>109</sup> Ag	1	2000	$2,4 \cdot 10^{-15}$	3,3	$1,5 \cdot 10^{-5}$	$5,0 \cdot 10^{-7}$
<sup>109</sup> Ag	10	293	$2,4 \cdot 10^{-15}$	3,3	$3,9 \cdot 10^{-4}$	$1,4 \cdot 10^{42}$
<sup>109</sup> Ag	10	2000	$2,4 \cdot 10^{-15}$	3,3	$1,5 \cdot 10^{-4}$	$5,0 \cdot 10^{-7}$

**Tab. I-3** – Temps de vol moyen entre deux collages et temps de collage moyen sur des parois en tantale, pour différents éléments condensables et différentes températures

- Le temps de collage moyen,  $\tau_{collage}$ , correspondant au temps moyen que met l'atome pour ressortir de la paroi. Ce temps de collage moyen est défini par l'équation de Frenkel [Boe-69] suivant la loi :

$$\tau_{collage} = \tau_0 e^{\frac{\Delta H_a}{k_B T}} \quad (I-8)$$

où  $\Delta H_a$ , appelée généralement "enthalpie d'adsorption", représente l'énergie d'activation pour la désorption de l'élément radioactif adsorbé et  $\tau_0$ , la période de vibration normale à la surface de la particule adsorbée.

L'enthalpie d'adsorption dépend fortement de la nature de l'atome adsorbé et de celle de l'élément adsorbant. Des calculs existent pour estimer la valeur de  $\Delta H_a$  pour différentes parois et différents atomes [Roß-84][Eic-85]. L'enthalpie d'adsorption est considérée comme négligeable pour les gaz rares ( $\tau_{collage} \approx \tau_0$ ) et élevée pour les éléments condensables. Quelques

valeurs de  $\Delta H_a$ , correspondant au collage d'éléments condensables sur des parois en tantale [Kir-92], sont exposées dans le tableau I-3.

$\tau_0$  dépend également de la nature de l'atome adsorbé et de celle de l'élément adsorbant. Cependant, pour le même élément adsorbant, la valeur de  $\tau_0$  est constante, quel que soit l'élément adsorbé [Kir-87-a]. D'après la théorie de Frenkel, l'ordre de grandeur de  $\tau_0$  est estimé autour de  $10^{-12}$ - $10^{-13}$  s. Cependant, à partir de mesures effectuées sur une paroi en tantale [Kir-87-a], Kirchner a déduit une valeur pour  $\tau_0$  de  $2,4 \cdot 10^{-15}$  s pour le collage sur des parois en tantale. A notre connaissance, la valeur de  $\tau_0$  n'est pas connue pour le collage sur des parois en carbone.

Quelques valeurs du temps de collage moyen sur des parois en tantale, pour différents éléments condensables et différentes températures, sont exposées dans le tableau I-3. En ne chauffant pas les parois ( $T \approx 293$  K), le temps de collage moyen est gigantesque pour des éléments condensables. Il n'est donc pas envisageable, à température de salle ( $T \approx 293$  K), de collecter des éléments radioactifs condensables, par le processus d'effusion, avant leur décroissance radioactive. En chauffant les parois ( $T \approx 2000$  K), le temps de collage moyen est beaucoup plus raisonnable mais dépend fortement de la valeur de  $\Delta H_a$ . Pour des distances moyennes parcourues entre deux collages de l'ordre de 1 à 10 cm et pour une température de paroi en tantale de 2000 K, le temps de collage moyen est négligeable devant le temps de vol moyen pour des valeurs de  $\Delta H_a$  inférieures ou égales à 3 eV. Il devient de l'ordre du temps de vol moyen pour  $\Delta H_a$  de l'ordre de 4 eV. Enfin, il devient dominant pour des valeurs de  $\Delta H_a$  supérieures ou égales à 5 eV.

A partir des paramètres fondamentaux du processus d'effusion, le temps d'effusion moyen,  $\tau_{\text{effusion}}$ , est exprimé de la manière suivante :

$$\tau_{\text{effusion}} = \chi(\tau_{\text{vol}} + \tau_{\text{collage}}) = \frac{1}{v} \quad (\text{I-9})$$

où  $v$  représente l'équivalent d'une constante caractéristique d'effusion (en  $\text{s}^{-1}$ ). On lui associe une fonction retard  $P_{\text{effusion}}(t)$ , dont la forme a été obtenue, par Kirchner, par analogie avec la sortie d'un volume à travers un orifice [Kir-92]. Cette fonction représente la probabilité que le temps d'effusion d'un atome soit  $t$  :

$$P_{\text{effusion}}(t) = v e^{-vt} \quad (\text{I-10})$$

La quantité recherchée est la proportion des atomes radioactifs qui vont atteindre la source d'ions avant leur décroissance radioactive. Cette proportion représente l'efficacité d'effusion  $\xi_{\text{eff}}$ . Or, la probabilité qu'un atome radioactif atteigne la source d'ions à l'instant  $t$ , avant sa décroissance radioactive, est le produit de la probabilité que le temps d'effusion soit  $t$  ( $P_{\text{effusion}}(t)$ ) par la probabilité que l'atome n'ait pas décré du temps 0 jusqu'au temps  $t$  ( $e^{-\lambda t}$ ). En intégrant sur tous les temps  $t$  possibles, on obtient la valeur de l'efficacité d'effusion, soit :

$$\xi_{\text{eff}} = \int_{t=0}^{\infty} v e^{-vt} e^{-\lambda t} dt = \frac{v}{v + \lambda} = \frac{1}{1 + \tau_{\text{effusion}} \lambda} \quad (\text{I-11})$$

Le temps d'effusion moyen (cf. équation I-9) diminue lorsqu'on augmente la température. Si on pouvait augmenter indéfiniment la température,  $\tau_{\text{effusion}}$  atteindrait la valeur limite de  $\chi\tau_0$ . L'efficacité d'effusion augmente donc avec la température et si on pouvait augmenter indéfiniment la température, elle atteindrait un plateau dont la valeur est  $1/(1+\chi\tau_0\lambda)$  qu'on peut considérer égale à 1 ( $\chi\tau_0\lambda \ll 1$ ). Cependant, aux températures maximales pour lesquelles on travaille (quelques milliers de K),  $\tau_{\text{effusion}}$  est très loin de sa valeur limite, car  $\tau_{\text{vol}} \gg \tau_0$  (cf. tableau I-3). On pourra considérer que l'efficacité d'effusion a atteint le plateau et est égale à 1, dès que  $\chi(\tau_{\text{vol}} + \tau_{\text{collage}})\lambda \ll 1$ . Pour des gaz rares ( $\tau_{\text{collage}} \approx \tau_0$ ), ce n'est pas forcément le cas, à 2000 K, en ce qui concerne les isotopes radioactifs à temps de vie très court. Cela dépend fortement de la valeur de  $\chi\tau_{\text{vol}}$  et donc de la géométrie du système.

La conclusion importante est que l'efficacité d'effusion, à travers un tube non-chauffé, est nulle pour des éléments radioactifs condensables (en raison d'une enthalpie d'adsorption élevée), alors qu'elle reste élevée (voire très proche de 1) pour des gaz rares radioactifs (en raison d'une enthalpie d'adsorption négligeable). Cela veut dire, que la moindre paroi non-chauffée présente, entre la cible épaisse et la source d'ions, diminuera drastiquement l'efficacité d'effusion des éléments condensables. Par conséquent, pour un système où il existe des parois non-chauffées entre la cible épaisse et la source d'ions, seuls les éléments se propageant sous une forme gazeuse stable (par exemple, les gaz rares) parviendront, avec une bonne efficacité d'effusion, jusqu'à la source d'ions.

La conséquence importante, qui résulte de cette conclusion, est que pour transporter un atome radioactif condensable de la cible jusqu'à la source, il faut soit former un gaz stable (volatil à 293 K), soit éviter toute paroi non-chauffée avant la source d'ions. Cette conséquence est primordiale, car une grosse partie de cette thèse a reposé sur elle.

Dans le cas d'un transport sous forme gazeuse, il faut trouver une molécule stable (volatil à 293 K), constituée de l'élément radioactif à transporter associé à d'autres éléments particuliers. On parle alors de gaz porteur. La difficulté est d'arriver à former ce gaz porteur sans provoquer de dysfonctionnement (comme la détérioration de la cible). Un exemple d'utilisation de gaz porteur, effectué à Orsay [Put-81][Sau-84], est l'introduction de  $\text{CF}_4$  dans une cible de carbone afin de produire des molécules stables, constituées de certains éléments radioactifs condensables, comme le niobium, le tantale ou le tungstène, associés avec du fluor. Les molécules fluorées formées, avec ces éléments radioactifs, ont une bien meilleure efficacité d'effusion que ces éléments radioactifs seuls.

Au GANIL, les deux approches (formation d'un gaz, volatil à 293 K, ou minimisation des parois froides) sont à l'étude. La première approche (formation d'un gaz porteur) fait l'objet des résultats, concernant l'oxygène, l'azote et le fluor, présentés dans le chapitre II. La seconde approche (minimisation des parois froides) fait l'objet des résultats, concernant les alcalins, présentés dans le chapitre III. Ce cas particulier fait appel à

l'utilisation d'une autre catégorie (cf. partie suivante) de source d'ions (source à ionisation de surface) que celle habituellement utilisée au GANIL (source ECR). La seconde approche (minimisation des parois froides) avec utilisation d'une source d'ions ECR (cf. partie suivante) a été initiée, au GANIL, avec l'introduction de la cible au sein de la source [Lec-97-a] et est toujours en cours de recherche et développement actuellement.

A la fin de leur parcours par effusion, les atomes radioactifs ont atteint la source d'ions. Nous allons donc nous intéresser à l'étape suivante que vont rencontrer les atomes radioactifs : l'ionisation. Nous allons expliquer ce qu'est une source d'ions et le résultat que va engendrer l'utilisation d'une telle source.

### I.2.1.3 Utilisation d'une source d'ions

Le but d'une source d'ions [Bro-89][Wol-95] est de transformer, dans les meilleurs délais possibles, les atomes radioactifs en ions radioactifs et d'obtenir la meilleure efficacité d'ionisation possible sur un seul état de charge. Il existe plusieurs catégories de source d'ions, chacune basée sur un processus théorique différent.

#### • Les sources d'ions à plasma :

Ce type de source est énormément employé. Les atomes radioactifs sont transformés en ions radioactifs à l'intérieur d'un plasma (ensemble d'électrons et d'ions, globalement neutre, en équilibre avec les éléments qui ne sont pas ionisés). De nombreuses réactions (ionisations, recombinaisons et échanges de charge) ont lieu, en permanence, à l'intérieur du plasma. Les ions produits sont extraits de la source grâce à une différence de potentiel appliquée entre une électrode plasma et une ou plusieurs électrodes d'extraction.

En comparant les différentes versions existantes de source d'ions à plasma, on s'aperçoit que plusieurs procédés sont utilisés pour générer le plasma. Par exemple :

- Des décharges électriques sont utilisées pour la FEBIAD (**F**orced **E**lectron **B**eam **I**nduced **A**rc **D**ischarge) [Kir-75][Kir-76][Kir-87-b]. Une source de ce type est employée à ISOLDE et son procédé, pour générer le plasma, favorise la formation d'ions monochargés en un temps passé dans la source d'environ 10 ms [Kir-81].
- Des canons à électrons, dont le faisceau est confiné, sont utilisés pour les EBIS (**E**lectron **B**eam **I**on **S**ource) [Don-98]. Ces sources fournissent des états de charge très élevés. Elles sont pulsées et les faisceaux obtenus sont de faible intensité.
- Les "Résonances Cyclotroniques Electroniques" sont utilisées pour les sources ECRIS (**E**lectron **C**yclotron **R**esonance **I**on **S**ources) [Gel-96]. Ce type de source favorise la formation d'ions multichargés. Une source ECRIS, NANOGAN III, a été utilisée, au cours de cette thèse, pour les résultats expérimentaux présentés dans le chapitre II. C'est pourquoi le principe théorique de fonctionnement d'une source d'ions ECR est présenté en **annexe C**.

• Les sources d'ions à ionisation de surface :

Ce type de source favorise la formation d'ions monochargés. Dans une telle source, les atomes radioactifs sont transformés en ions radioactifs par contact avec une surface métallique chauffée. Cependant, seuls certains éléments (principalement les alcalins) sont ionisés par ce type de source. Une source à cavité chaude est une source dont le principe théorique d'ionisation repose sur celui d'une source à ionisation de surface. Ce type de source a été utilisé, au cours de cette thèse, pour les résultats expérimentaux présentés dans le chapitre III. Le principe théorique de fonctionnement d'une telle source est décrit dans la partie 1 du chapitre III.

• Les sources d'ions laser :

Les sources d'ions laser [Dup-97] permettent d'obtenir une excellente sélectivité des particules à ioniser par ionisation résonante. Des lasers de haute puissance et ajustables en fréquence sont nécessaires pour faire fonctionner une telle source. Elle favorise la formation d'ions monochargés.

• Cas particulier de la transformation  $1+/n+$  :

Nous avons vu que plusieurs sources (FEBIAD, sources à ionisation de surface, etc.) ne permettent pas d'obtenir des états multichargés. Or, les accélérateurs, pour fournir des énergies importantes, utilisent des états de charge élevés. C'est pourquoi des recherches et développements sont en cours pour coupler des sources multichargés à des sources monochargés. Ce procédé, appelé « Charge Breeding », fait l'objet d'une large collaboration européenne.

Nous avons maintenant fini de décrire les différentes catégories de source d'ions. Les atomes radioactifs ont été transformés en ions radioactifs et ont été accélérés. Ils sont donc confrontés à l'étape finale de la méthode ISOL : la séparation isotopique.

Cette séparation isotopique est effectuée en utilisant un dipôle magnétique. Ce dernier permet de sélectionner la variété de faisceaux souhaitée (tri selon le rapport « masse fois vitesse sur charge électrique »). Les ions radioactifs, avant d'arriver au dipôle magnétique subissent le même potentiel accélérateur. Leur vitesse est donc proportionnelle à la racine carrée du rapport "charge électrique sur masse". L'utilisation d'un dipôle magnétique, dans ces conditions, engendre donc un tri suivant le rapport "charge électrique sur masse". Ce tri est d'autant plus sélectif que la dispersion en vitesse des ions radioactifs est faible, que le coefficient de dispersion transversal du dipôle est élevé et que l'acceptance angulaire du dipôle est faible. En sortie du dipôle, le faisceau d'ions radioactifs sélectionné est pollué par les éléments ayant un rapport « masse fois vitesse sur charge électrique » compris dans l'acceptance du dipôle (pollution par les éléments ayant la même charge, la même vitesse et le même nombre de nucléons, par exemple).

Nous avons maintenant terminé la description de l'aspect théorique de la méthode ISOL « cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique ». Nous allons donc nous intéresser à une autre technique basée sur la méthode ISOL.

### **I.2.2 La technique « cible mince – stoppeur solide – source d'ions – séparateur isotopique »**

Cette fois-ci, les ions radioactifs ne sont pas produits dans une cible épaisse, mais dans une cible mince. Le terme "cible mince" signifie que les ions radioactifs produits, qui nous intéressent, ne sont pas arrêtés dans la cible. Ils en ressortent sans être neutralisés et atteignent un stoppeur solide où ils sont arrêtés et, par conséquent, neutralisés.

La combinaison "cible mince + stoppeur solide" équivaut à une "cible épaisse" pour les ions radioactifs produits. Les aspects théoriques à prendre en considération sont donc exactement les mêmes que pour la technique « cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique » (cf. partie I.2.1), c'est-à-dire, la diffusion, des atomes radioactifs produits, hors du stoppeur solide, l'effusion jusqu'à la source d'ions, l'ionisation et enfin la séparation isotopique. Nous ne nous attarderons donc pas sur les aspects théoriques de cette technique.

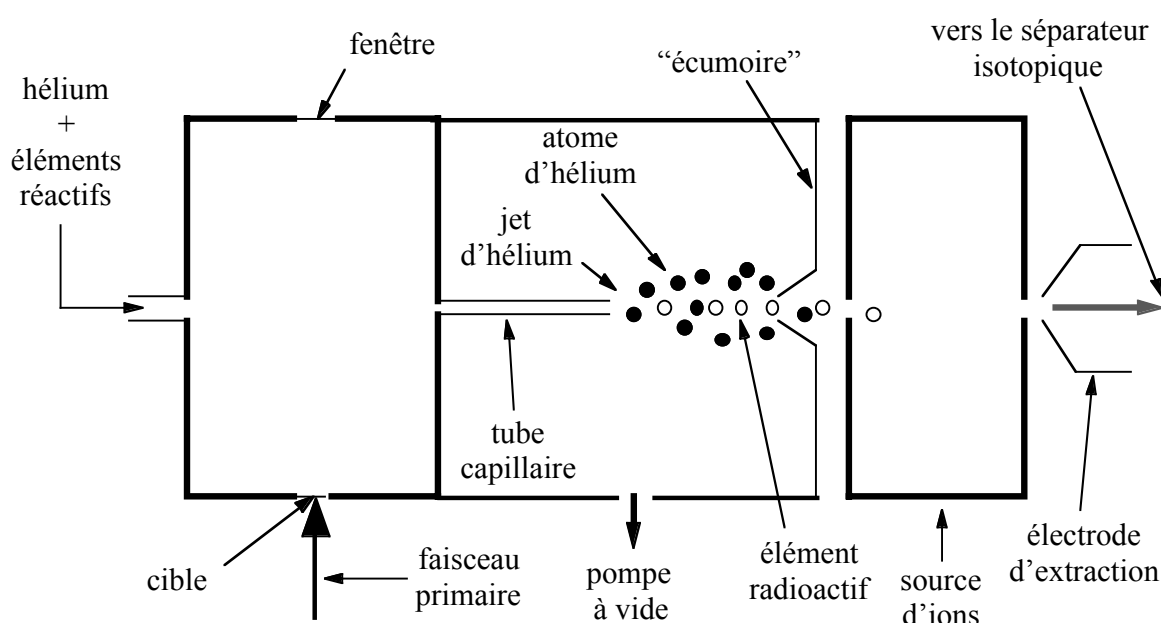
Du point de vue technique, la séparation de la cible épaisse en deux parties présente deux intérêts distincts :

- la possibilité d'utiliser un stoppeur solide, de nature différente de celle de la cible mince, permettant une meilleure diffusion des éléments radioactifs produits recherchés. Dans ce cas, utiliser un stoppeur solide n'est intéressant que si on améliore vraiment la diffusion. En ce qui concerne le problème de l'effusion, cette technique peut présenter un intérêt pour les éléments radioactifs condensables. En effet, l'utilisation d'un stoppeur solide favorisant la formation d'un gaz porteur (cf. partie I.2.1.2) est à envisager.
- la possibilité d'arrêter le faisceau primaire dans la cible mince. Les possibilités d'utilisation d'un tel procédé sont restreintes : les ions radioactifs produits recherchés doivent avoir un nombre de protons beaucoup plus faible que les noyaux projectiles du faisceau primaire et une vitesse, au moment de leur création, proche de celle du projectile, pour pouvoir stopper ces derniers bien avant les ions radioactifs produits qui nous intéressent. La fragmentation du projectile est la seule réaction nucléaire qui permette de valider ces deux conditions. L'intérêt d'arrêter le faisceau primaire dans la cible mince est de pouvoir obtenir une température du stoppeur solide plus uniforme (pas de dépôt d'énergie du faisceau primaire et contrôle de la température par un chauffage annexe) afin de pouvoir augmenter au maximum la température du stoppeur solide et donc de faciliter la diffusion des éléments radioactifs hors de ce stoppeur.

### **I.2.3 La technique « cible mince – stoppeur gazeux – jet d'hélium – source d'ions – séparateur isotopique »**

Dans cette technique, schématisée par la figure I-9, les ions radioactifs sont produits dans une cible mince. Ils en sortent sans être neutralisés et atteignent un stoppeur gazeux

constitué d'hélium à haute pression (1 à 2 bars) et contenant des éléments réactifs. Les ions radioactifs produits sont thermalisés dans l'hélium et se neutralisent par association avec les éléments réactifs. Cette association permet d'améliorer l'efficacité de transport. Les éléments réactifs sont soit un aérosol [Wie-75][Wol-75], soit d'autres molécules réactives (comme les molécules halogénées, par exemple) [Äys-76]. Les éléments radioactifs sont alors transportés, avec le flux d'hélium, à travers un long tube capillaire jusqu'à la source d'ions [Val-68][Mac-72][Äys-74]. Les éléments radioactifs sont injectés dans la source d'ions grâce à la formation d'un jet d'hélium à la sortie du tube capillaire. Une "écumoire" [Sch-75] minimise la quantité d'hélium entrant dans la source d'ions, ce qui permet d'améliorer le rendement de la source. Comme les éléments radioactifs se déplacent essentiellement sur l'axe (en raison de leur masse beaucoup plus élevée que celle de l'hélium), ils sont injectés efficacement dans la source.



**Fig. I-9** - Schématisation de la technique ISOL « cible mince – stoppeur gazeux – jet d'hélium – source d'ions – séparateur isotopique »

Grâce à ce système, les éléments radioactifs produits sont transportés rapidement jusqu'à la source d'ions (environ 100 ms). L'efficacité globale de cette technique, source d'ions incluse, varie, d'après des mesures expérimentales [Äys-76], entre environ 0.01% et 1%, suivant l'élément radioactif concerné. L'efficacité de transport à travers le tube capillaire peut atteindre les 100% [Äys-74]. Après extraction de la source d'ions, le faisceau d'ions radioactifs désiré est sélectionné par le séparateur isotopique.

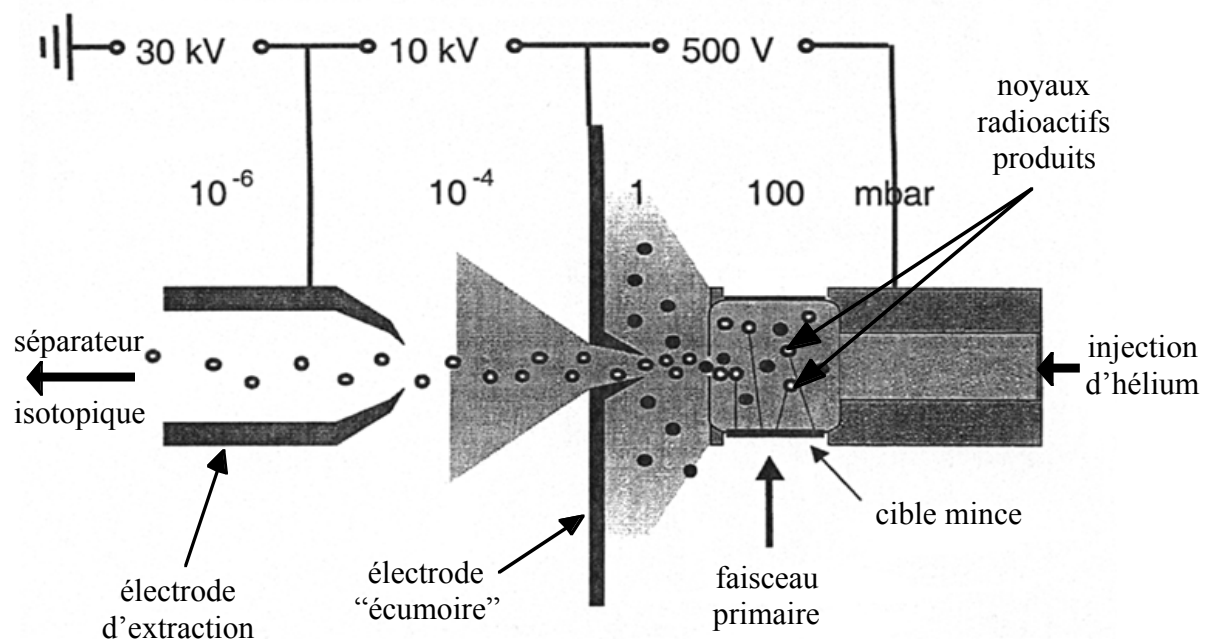
Pour se débarrasser du faisceau primaire, il peut être utile d'installer un séparateur de fragments entre la cible mince et le stoppeur gazeux. L'utilité de se débarrasser du faisceau primaire réside dans la nécessité d'éviter la formation d'un plasma dans l'hélium (cf. "l'effet plasma" dans la partie 2 du chapitre IV) qui peut être engendré par le dépôt d'énergie du faisceau primaire.



### I.2.4 La technique « cible mince – guide d'ions – séparateur isotopique »

L'aspect théorique de cette technique est détaillé dans la partie 1 du chapitre IV. Nous allons cependant évoquer succinctement, dans cette partie, son principe.

Cette technique, appelée IGISOL (Ion Guide Isotope Separator On-Line) [Ärj-81-a] [Ärj-87], est schématisée par la figure I-10. Ici encore, les ions radioactifs sont produits dans une cible mince. Ils ressortent donc de la cible sans être neutralisés. Ils sont alors arrêtés, comme pour la technique précédente, dans de l'hélium, mais cette fois-ci, le plus pur possible. En raison du potentiel de première ionisation élevé de l'hélium, supérieur à ceux des ions radioactifs produits, ces derniers ne sont pas neutralisés et restent à un état de charge  $1+$ , voir même  $2+$  pour certains dans de l'hélium pur. Les ions radioactifs sont ensuite transportés par le flux d'hélium à l'extérieur du guide. Ils sont accélérés par l'électrode d'extraction, puis transportés jusqu'au séparateur isotopique, où le faisceau d'ions radioactifs désiré est sélectionné. Une électrode dite "écumoire", en sortie du guide d'ions, empêche une partie de l'hélium d'atteindre le séparateur, afin de ne pas détériorer l'émittance du faisceau.



**Fig. I-10** - Schématisation de la technique ISOL « cible mince – guide d'ions – séparateur isotopique » [Äys-01]

En raison du petit volume du guide d'ions (quelques cm<sup>3</sup>) et d'une différence de pression élevée entre l'extérieur et l'intérieur du guide, l'évacuation du gaz est très rapide. Elle permet un transport des ions radioactifs produits en un temps très court (environ 1 ms).

Il peut être utile, également, d'installer un séparateur de fragments entre la cible mince et le guide d'ions. Cela nécessite, bien évidemment, que la cible mince soit placée à l'extérieur du guide d'ions. Comme pour la technique précédente (cf. partie I.2.3), l'intérêt d'utiliser un tel outil réside dans la nécessité d'éviter la formation d'un plasma dans l'hélium (cf. "l'effet plasma" dans la partie 2 du chapitre IV) engendré par le dépôt d'énergie du faisceau primaire.

Maintenant que nous avons abordé les différents aspects techniques et théoriques de la méthode ISOL, nous allons effectuer une comparaison qualitative des différents procédés.

### **I.2.5 Bilan général qualitatif de la méthode ISOL**

Afin d'avoir une meilleure vision de l'ensemble de la méthode ISOL, une comparaison qualitative [Ben-01] des différentes techniques ISOL est résumée dans le tableau I-4.

METHODES	AVANTAGES	INCONVENIENTS
« cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique »	bonne qualité du faisceau	la cible épaisse (ou le stoppeur) doit être à haute température
« cible mince – stoppeur solide – source d'ions – séparateur isotopique »		seule une partie des particules produites sort de la cible avant leur désintégration
		temps, de la méthode, long ; temps plus ou moins long suivant les éléments et la forme de la cible
		nécessité d'une source d'ions
« cible mince – stoppeur gazeux – jet d'hélium – source d'ions – séparateur isotopique »	toutes les particules sortent de la cible	mauvaise qualité du faisceau
	temps de la méthode court	intensité limitée en sortie ("effet plasma")
		nécessité d'une source d'ions
« cible mince – guide d'ions – séparateur isotopique »	toutes les particules sortent de la cible	mauvaise qualité du faisceau
	temps de la méthode court	intensité limitée en sortie ("effet plasma")
	pas de source d'ions nécessaire	

**Tab. I-4** - Comparaison qualitative des différentes techniques ISOL [Ben-01]

Cette comparaison montre qu'il n'existe pas de technique ISOL "universelle", c'est-à-dire, qui permette de produire efficacement les faisceaux d'ions radioactifs, quels que soient l'élément et l'isotope considéré :

- les deux premières techniques permettent d'obtenir efficacement des faisceaux intenses pour les éléments radioactifs proches de la vallée de la stabilité. Elles perdent beaucoup en efficacité pour les isotopes loin de la vallée de la stabilité (temps de vie < 100 ms) et pour les

éléments condensables. Pour ces derniers, il faut soit faire intervenir la chimie pour former un gaz porteur (gaz stable volatile à 293 K), soit éviter toute paroi froide entre la cible et la source (cf. fin de la partie I.2.1.2).

- la dernière technique permet d'obtenir des intensités élevées (en comparaison aux autres techniques ISOL) pour les noyaux à temps de vie très court ( $< 10$  ms), à condition d'éviter "l'effet plasma" (cf. partie 2 du chapitre IV) et de limiter les "impuretés" (dans l'hélium et le matériel utilisé).

D'une manière générale, ces techniques sont complémentaires.

Maintenant que nous avons détaillé la méthode ISOL, nous allons nous intéresser au cas particulier de la production de faisceaux d'ions radioactifs au GANIL.

### **I.3 Cas particulier du GANIL**

Le GANIL [Gan-1], à Caen en Basse-Normandie, accélère des faisceaux primaires d'ions stables, à partir du carbone ( $Z = 6$ ) jusqu'à l'uranium ( $Z = 92$ ), jusqu'à une énergie maximale de 95.A MeV pour les ions les plus légers et 24.A MeV pour ceux les plus lourds [Gan-2]. La fragmentation est le processus nucléaire majoritaire, au GANIL, dans la formation des ions radioactifs. Nous allons maintenant quantifier le taux de production (en particules par seconde) des noyaux radioactifs et présenter succinctement les différents équipements utilisés pour produire les faisceaux d'ions radioactifs.

#### **I.3.1 La production des ions radioactifs au GANIL**

Dans le cas de la fragmentation, un modèle de prédiction des sections efficaces de fragmentation, appelé EPAX, a été développé par K. Sümmerer [Süm-90]. Ce modèle prévisionnel est basé sur des relations semi-empiriques établies à partir, entre autres, de données sur la fragmentation d'ions lourds sur des cibles légères. La section efficace totale de production du noyau possédant  $A$  nucléons et  $Z$  protons, soit  $\sigma(A, Z)$ , est donnée par une relation de la forme :

$$\sigma(A, Z) = \sigma_R F(A) G(Z) \quad (\text{I-12})$$

où  $F(A)$  représente la distribution en masse des noyaux formés,  $G(Z)$ , la distribution en charge des noyaux formés et  $\sigma_R$ , la section efficace totale de réaction dont une représentation paramétrique est calculée en **annexe A**. Les distributions en masse et en charge sont détaillées dans les publications de Sümmerer [Süm-90]. Le modèle EPAX a été récemment remis à jour [Süm-00] sous la forme EPAX2.

Finalement, le taux de production (en particules par seconde) du noyau possédant  $A$  nucléons et  $Z$  protons, soit  $\tau(A, Z)$ , est donné par la relation suivante :

$$\tau(A, Z) \approx \Phi_0 N \sigma(A, Z) x_R \quad (\text{I-13})$$

où

- $\Phi_0$  représente le nombre de projectiles incidents par seconde
- $N$ , le nombre d'atomes cible par  $\text{cm}^3$
- $\sigma(A,Z)$ , la section efficace totale de production, en  $\text{cm}^2$ , du noyau possédant  $A$  nucléons et  $Z$  protons, donnée par EPAX
- $x_R$ , l'épaisseur de cible, en cm, traversée par le faisceau de projectiles incidents.

Maintenant que nous avons établi le taux de production (en particules par seconde) du noyau possédant  $A$  nucléons et  $Z$  protons (cf. équation I-13), nous allons nous intéresser aux différents facteurs qui peuvent améliorer ce taux de production.

Pour un couple projectile-cible fixé, le taux de production d'un noyau peut être amélioré en augmentant l'intensité du faisceau primaire ( $\Phi_0$ ). Les limitations actuelles, en intensité, des faisceaux primaires disponibles au GANIL sont accessibles sur le site Internet [Gan-2]. Les limitations requises par la radioprotection sont une intensité maximale de  $2.10^{13}$  particules par seconde et une puissance maximale de 6 kW. Cela impose, par exemple, une limitation de 3,6 kW pour le  $^{12}\text{C}$  à 95.A MeV et une limitation de 6 kW pour l' $^{36}\text{Ar}$  à 95.A MeV (cf. projet THI [Bar-95][And-98][Bar-98]).

Toujours avec un couple projectile-cible fixé, on peut améliorer le taux de production d'un noyau en augmentant le nombre d'atomes cible par  $\text{cm}^2$  ( $Nx_R$ ). Or, d'après l'expression de  $N$  donnée par l'équation D-6 de l'**annexe D**, le produit  $Nx_R$  est environ égal à  $\rho_C x_R / m_n A_C$ , où  $m_n$  représente la masse du nucléon (en g) et  $\rho_C x_R$ , l'épaisseur de cible traversée par le faisceau, en  $\text{g}/\text{cm}^2$ . Donc, avec un couple projectile-cible fixé, on peut améliorer le taux de production d'un noyau en choisissant une énergie initiale la plus élevée possible pour augmenter la valeur du parcours  $R$  dans la cible [Nor-70]. Les énergies initiales maximales des faisceaux primaires disponibles au GANIL sont également consultables sur le site Internet [Gan-2]. Une remarque importante est que, à projectile fixé et à énergie initiale du projectile fixée, on peut améliorer le taux de production d'un noyau en augmentant le rapport  $\rho_C x_R / m_n A_C$ . La perte d'énergie en  $\text{MeV}/\text{g}/\text{cm}^2$  donnée par la formule de Bethe [Bet-53][Nor-70] dépend, en première approximation, du rapport  $Z_C/A_C$ , qui dépend très peu du matériau utilisé (le rapport reste proche de 0,5). Le parcours  $R$  d'un projectile en  $\text{g}/\text{cm}^2$  est donc très peu dépendant de la nature de la cible [Nor-70] puisqu'il dépend du rapport  $A_C/Z_C$ . Pour améliorer le taux de production d'un noyau, il faut augmenter le rapport  $\rho_C x_R / m_n A_C$  et donc augmenter le rapport  $1/Z_C$ . Il faut donc choisir une cible ayant le plus petit nombre de protons ( $Z_C$ ).

Enfin, toujours avec un couple projectile-cible fixé, on peut améliorer le taux de production d'un noyau en augmentant la valeur de la section efficace totale de production ( $\sigma(A,Z)$ ). Cependant, pour la fragmentation, la section efficace est très peu dépendante de l'énergie.

Maintenant, il nous reste à améliorer le taux de production d'un noyau en comparant les différents couples projectile-cible, à intensité  $\Phi_0$  fixée (en particules par seconde), à énergie initiale du projectile fixée et pour un nombre d'atomes cible par  $\text{cm}^2$  ( $Nx_R$ ) fixé. EPAX (basé sur la fragmentation du projectile) nous indique alors qu'on peut améliorer le taux de production d'un noyau en choisissant un projectile ayant un nombre de protons ( $Z_P$ ) le

plus proche possible, par valeur supérieure ou égale, du nombre de protons ( $Z$ ) de l'élément qu'on veut produire. Il nous indique également qu'on peut améliorer le taux de production d'un noyau en choisissant un projectile ayant un nombre de neutrons ( $A_P - Z_P$ ) le plus proche possible, par valeur supérieure, du nombre de neutrons ( $A - Z$ ) de l'élément qu'on veut produire.

Pour conclure, on peut améliorer le taux de production du noyau possédant  $A$  nucléons et  $Z$  protons de la manière suivante :

- en choisissant un projectile ayant un nombre de protons ( $Z_P$ ) le plus proche possible, par valeur supérieure ou égale, de  $Z$ .
- en choisissant un projectile ayant un nombre de neutrons ( $A_P - Z_P$ ) le plus proche possible, par valeur supérieure, de  $A - Z$ .
- en choisissant l'intensité ( $\Phi_0$ ) maximale et l'énergie ( $E_0$ ) maximale pour le projectile choisi ci-dessus ( $Z_P, A_P$ ).
- en choisissant une cible ayant le plus petit nombre de protons ( $Z_C$ ).

A titre d'exemple, les taux de production, au GANIL, de quelques noyaux dans une cible épaisse sont répertoriés dans le tableau I-5.

noyau radioactif	réaction utilisée	taux de production par seconde dans la cible
$^{35}\text{Ar}$	$^{36}\text{Ar} + ^{12}\text{C} \quad 95.\text{A MeV} \quad 6 \text{ kW}$	$1,1.10^{10} \text{ p/s}$
$^{31}\text{Ar}$	$^{36}\text{Ar} + ^{12}\text{C} \quad 95.\text{A MeV} \quad 6 \text{ kW}$	$4,4.10^4 \text{ p/s}$
$^{14}\text{O}$	$^{16}\text{O} + ^{12}\text{C} \quad 95.\text{A MeV} \quad 2.10^{13} \text{ p/s (4,9 kW)}$	$5,0.10^9 \text{ p/s}$
$^{11}\text{Li}$	$^{18}\text{O} + ^{12}\text{C} \quad 76.\text{A MeV} \quad 2.10^{13} \text{ p/s (4,4 kW)}$	$1,7.10^7 \text{ p/s}$

**Tab. I-5** – Taux de production, au GANIL, de quelques noyaux dans une cible épaisse

Nous allons maintenant présenter succinctement les différents équipements utilisés pour produire les faisceaux d'ions radioactifs au GANIL. Une vue d'ensemble des accélérateurs et des aires expérimentales, du GANIL, est schématisée dans la figure I-11.

Les faisceaux d'ions radioactifs sont disponibles au GANIL depuis 1983. Historiquement, la première méthode utilisée pour les produire a été la fragmentation en vol du projectile [Lan-85] sur une cible mince. Cette méthode présente l'avantage d'être très rapide (le temps de transport est de l'ordre de la microseconde) et permet donc d'obtenir des faisceaux d'ions radioactifs à temps de vie très courts (inférieur à la milliseconde, à la limite de la stabilité vis-à-vis de l'émission de protons et de neutrons).

Par contre, les propriétés optiques du faisceau primaire sont dégradées pour le faisceau secondaire en raison de la dispersion en angle et en énergie provoquée par l'épaisseur de la cible. Comme le nombre de noyaux radioactifs produits augmentent avec l'épaisseur de la cible, un compromis est nécessaire, pour l'épaisseur de la cible, entre la perte d'une partie du

faisceau secondaire liée à une dégradation optique par épaissement de la cible et la diminution du nombre de noyaux radioactifs produits par amincissement de la cible.

Enfin, pour la fragmentation en vol du projectile, les ions radioactifs produits ont une énergie proche de celle du faisceau incident, donc le faisceau secondaire est constitué des noyaux d'intérêt mélangés aux ions du faisceau primaire qui n'ont pas réagi et aux autres noyaux créés. C'est pourquoi, des équipements d'analyse spécifiques sont nécessaires afin de pouvoir purifier le faisceau secondaire, comme, par exemple, LISE et la combinaison SSSI-ALPHA (cf. figure I-11).

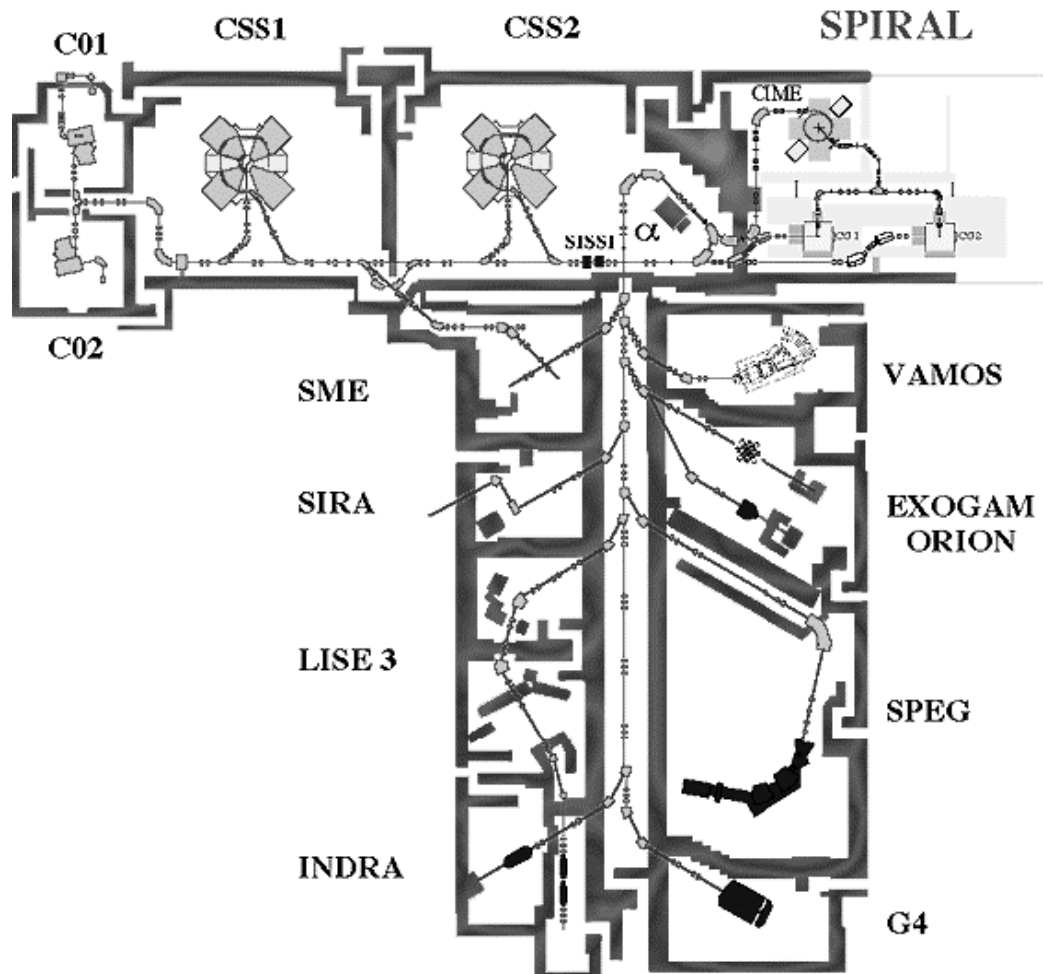


Fig. I-11 - Schéma des accélérateurs et des aires expérimentales du GANIL

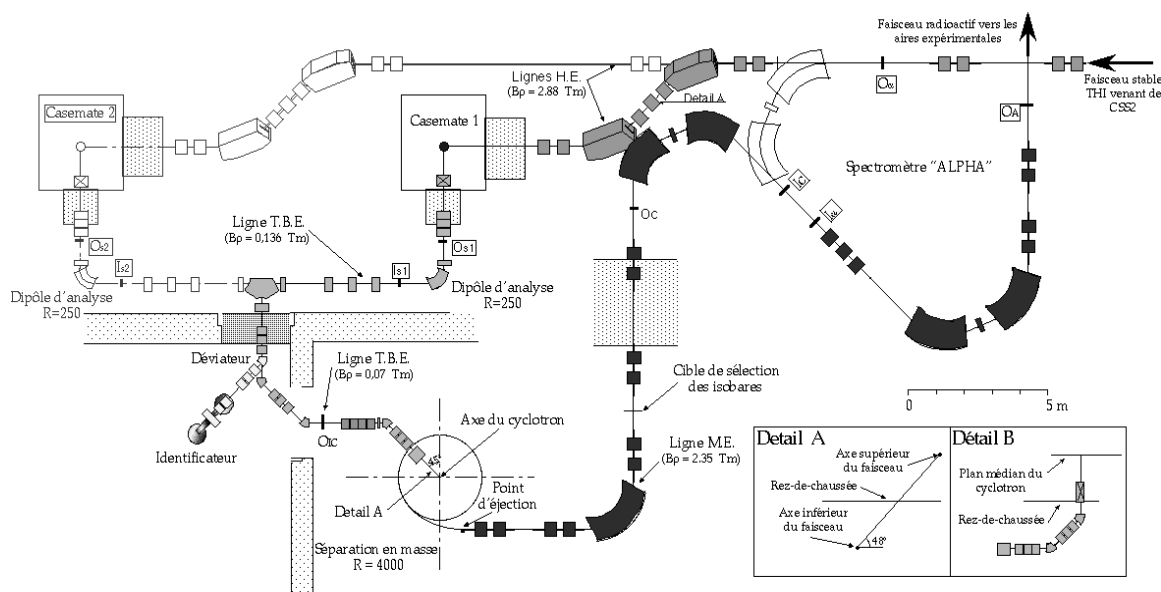
Les faisceaux d'ions radioactifs ainsi produits ont de très grandes énergies. Pour les ralentir, il est nécessaire de leur faire traverser de la matière. Ce ralentissement se traduit, pour les faisceaux d'ions radioactifs, par une perte supplémentaire en intensité et en qualité optique.

C'est pourquoi, une deuxième méthode de production des faisceaux d'ions radioactifs est utilisée, depuis Septembre 2001, avec l'ouverture de l'installation SPIRAL (Système de Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne) [Vil-02]. Basé sur la méthode ISOL (cf. partie I.2), SPIRAL permet de délivrer des faisceaux d'ions radioactifs intenses, possédant de bonnes qualités optiques, dans une gamme d'énergie (de 1,7.A MeV jusqu'à 24,8.A MeV)

complémentaire à celle délivrée par la méthode de fragmentation en vol du projectile. Nous allons maintenant détailler les principaux équipements de ce nouvel outil performant.

### **I.3.2 L'installation SPIRAL**

SPIRAL [Jou-93][Spi-94][Lie-95][Gue-96][Lau-97-a][Vil-97][Vil-02] est un système de production de faisceaux d'ions radioactifs qui utilise, suivant le faisceau d'ions radioactifs souhaité, une des deux techniques suivantes basées sur la méthode ISOL (cf. partie I.2) : la technique « cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique » ou la technique « cible mince – stoppeur solide – source d'ions – séparateur isotopique ». Ce système de production de faisceaux d'ions radioactifs, schématisé dans la figure I-12, est constitué des équipements principaux suivant : un ensemble cible-source (dans la casemate 1), un séparateur isotopique et un cyclotron (post-accélération).



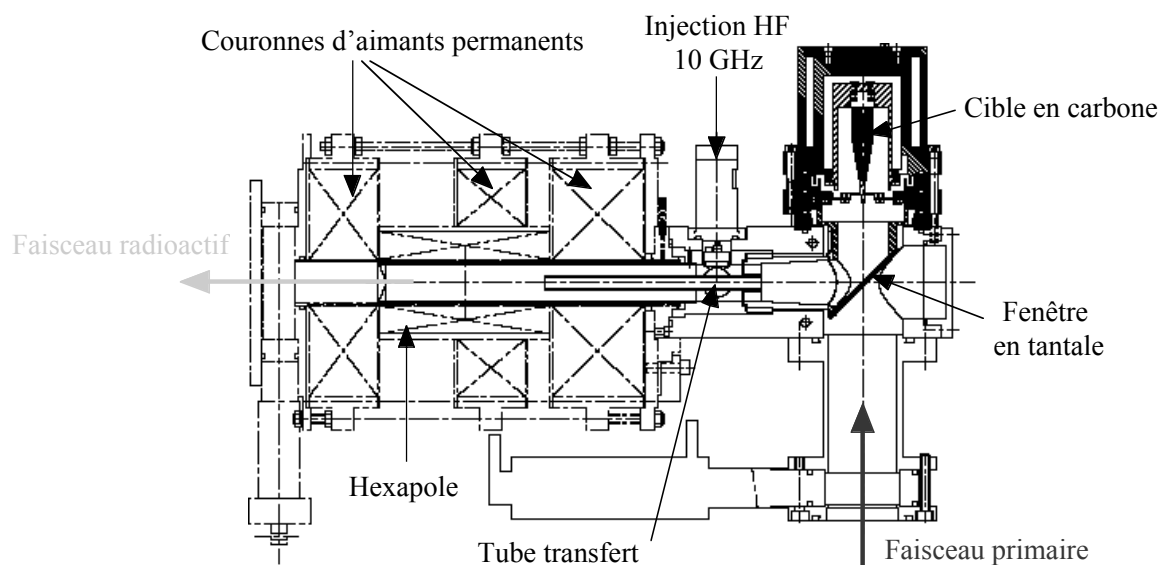
**Fig. I-12 - Schéma de l'installation SPIRAL**

#### **I.3.2.1 les ensembles cible-source de SPIRAL**

Nous avons vu précédemment que, pour optimiser l'intensité d'un faisceau d'ions radioactifs, il faut choisir une cible ayant un nombre de protons ( $Z_C$ ) le plus petit possible (cf. amélioration des taux de production dans la partie I.3.1). Nous avons vu aussi qu'il faut choisir une cible qui puisse supporter des températures les plus élevées possibles sans subir de détériorations dommageables et qui possède, si possible, une structure en grains (cf. optimisation de l'efficacité de diffusion dans la partie I.2.1.1). C'est pourquoi une cible en carbone a été choisie. En effet, le carbone présente, à la fois, un nombre de protons  $Z_C$  petit, une température de fusion (en fait, de sublimation) élevée (3652 °C) et la possibilité, pour le carbone graphite, de fabriquer des cibles avec une structure en grains.

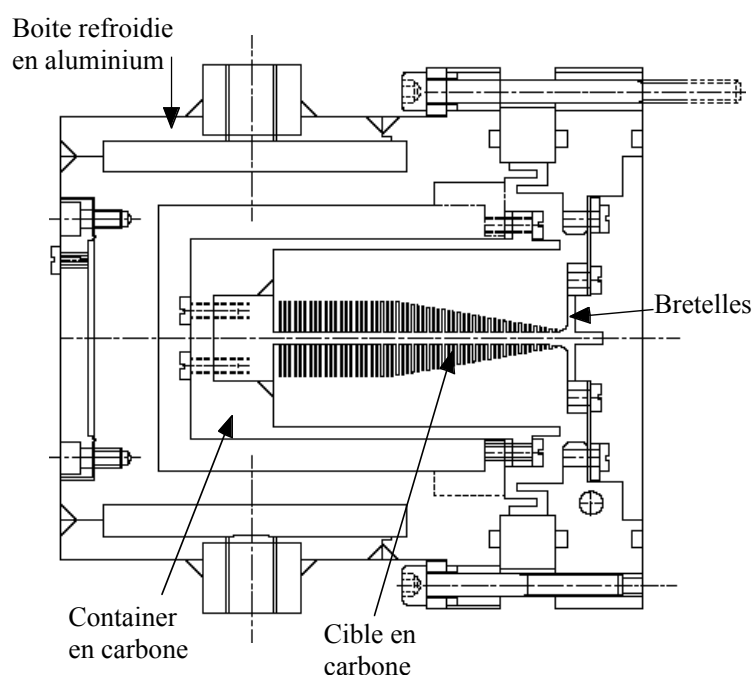
Deux ensembles cible-source différents existent actuellement pour produire les faisceaux d'ions radioactifs disponibles à partir de SPIRAL. Le premier est basé sur le concept

« cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique » et permet de délivrer des faisceaux d'argon, de néon et de krypton radioactifs. Il est représenté dans la figure I-13.



**Fig. I-13** - Ensemble cible-source de SPIRAL, basé sur la technique ISOL « cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique » et dédié à la production des faisceaux d'argon, de néon et de krypton radioactifs

La cible épaisse utilisée est une cible en carbone graphite constituée de grains dont la taille ne dépasse pas 1  $\mu\text{m}$  et fabriquée par l'industrie POCO Graphite [Poc-99]. Elle est représentée dans la figure I-14.

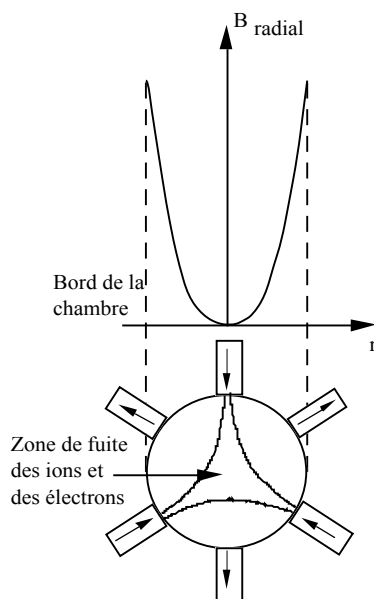


**Fig. I-14** - Schéma de la boîte cible contenant la cible dédiée à la production des faisceaux d'argon, de néon et de krypton radioactifs

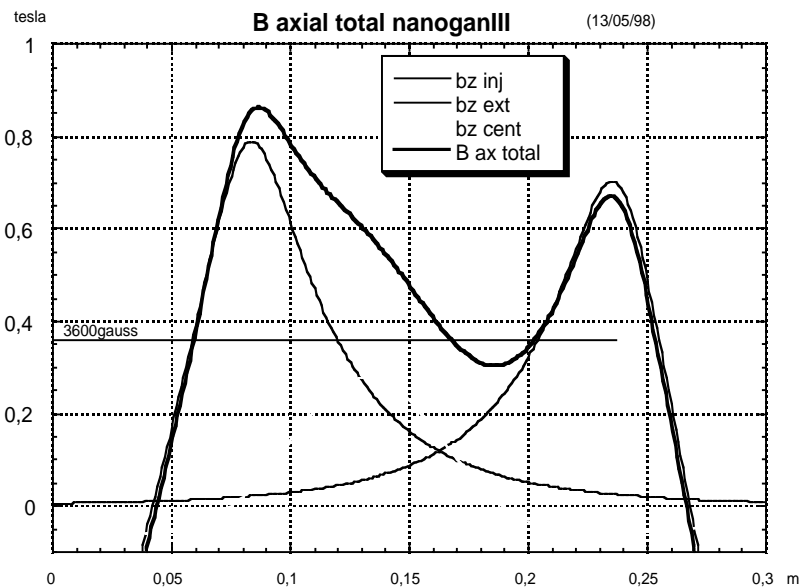


La cible est constituée de 53 lamelles de 0,5 mm d'épaisseur et espacées de 0,8 mm. Choisir des lamelles, plutôt qu'un bloc compact, possède l'avantage de diminuer la quantité de cible dans laquelle les atomes produits doivent diffuser et effuser. La forme conique de la cible (34 lamelles dans le cône), avec un demi-angle au sommet de  $10^\circ$ , permet de répartir le maximum du dépôt d'énergie du faisceau primaire sur plusieurs lamelles (la courbe de Bragg [Bet-53], donnant le dépôt d'énergie en fonction du parcours, montre que le dépôt d'énergie est maximal sur la fin du parcours). Enfin, le diamètre de la cible est de 19 mm. A partir des taux d'évaporation de différents carbones graphites [Fou-97], il a été évalué [Lan-98] qu'il ne faut pas dépasser la température de 2450 K pour ne pas évaporer une lamelle de 0,5 mm en moins de 15 jours (15 jours correspond à la durée autorisée d'activation, par irradiation avec un faisceau primaire, d'un ensemble cible-source de SPIRAL). Un chauffage ohmique de la cible par son axe est possible. Il permet d'augmenter la température de la cible quand l'élévation de température, liée au dépôt d'énergie du faisceau primaire, n'est pas suffisante.

La source d'ions, du premier ensemble cible-source, est une source d'ions ECR (cf. les sources d'ions à plasma dans la partie I.2.1.3) appelée Nanogan III. Elle a été conçue pour pouvoir avoir une résonance à 10 GHz [Mau-97] et permet la formation d'ions multichargés. Le champ magnétique radial de Nanogan III est créé par un hexapôle et schématisé dans la figure I-15. Le champ magnétique axial, créé par trois couronnes d'aimants permanents, est représenté dans la figure I-16.



**Fig. I-15** - Schématisation du champ magnétique radial de Nanogan III



**Fig. I-16** - Champ magnétique axial de Nanogan III

Enfin, il existe des parois froides entre la cible et la source (cf. schéma de l'ensemble cible-source dans la figure I-13). C'est pourquoi (cf. conclusions sur l'effusion de la partie I.2.1.2), seuls les éléments se propageant sous une forme gazeuse stable (volatile à 293 K) parviennent jusqu'à la source d'ions. Cet ensemble cible-source convient donc parfaitement

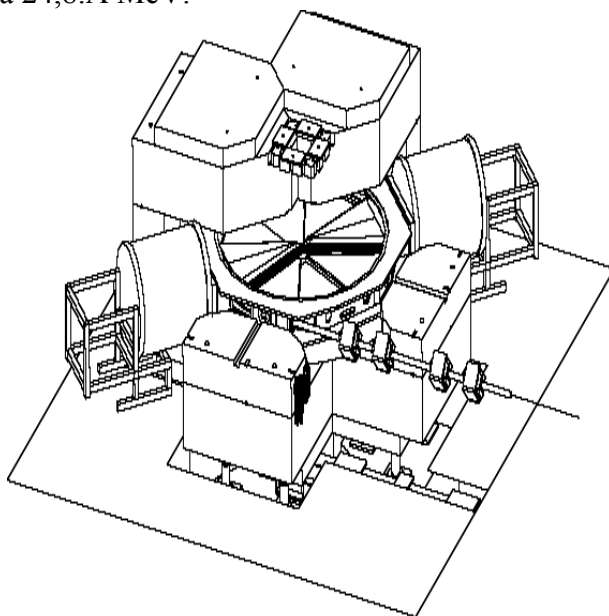
pour la production des faisceaux de gaz rares radioactifs (néon, argon et krypton) et permet une première purification du faisceau secondaire créé, puisque les éléments réfractaires, qui ne se propagent pas sous une forme gazeuse stable, ne parviennent pas jusqu'à la source d'ions.

Le deuxième ensemble cible-source [Lan-01], basé sur le concept « cible mince – stoppeur solide – source d'ions – séparateur isotopique », permet de délivrer des faisceaux d'hélium radioactifs et fonctionne sur les mêmes principes théoriques (cf. partie I.2.2) que le premier. La seule différence réside dans la séparation en deux blocs de la cible épaisse (cible de production + stoppeur solide), dont l'intérêt est de pouvoir arrêter le faisceau primaire ( $^{13}\text{C}$ ) dans la cible de production et de pouvoir arrêter, en même temps, les éléments qui nous intéressent (hélium radioactif) dans le stoppeur solide.

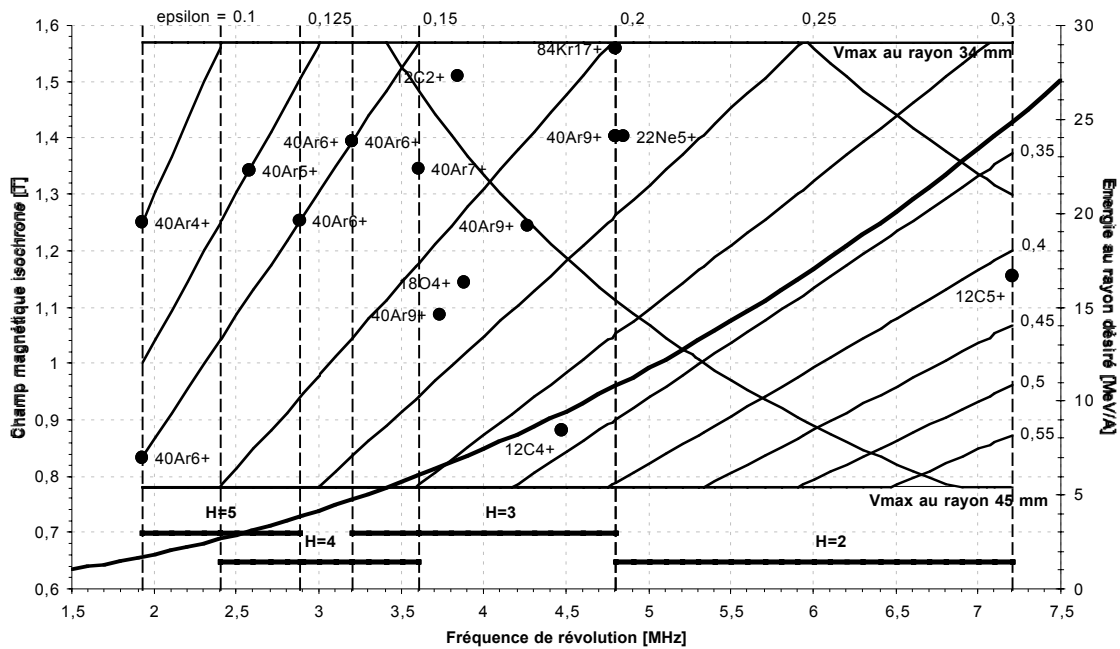
Après extraction de l'ensemble cible-source, le faisceau d'ions radioactifs souhaité est sélectionné par le dipôle d'analyse avant d'être injecté dans le cyclotron CIME (Cyclotron pour Ions de Moyenne Energie) [Boy-97][Bou-98]. La résolution en masse du dipôle est de  $1/250$  et un jeu de fentes, placé au point objet du dipôle, limite l'émittance transverse à  $80 \pi \text{ mm.mrad}$ . Avant l'injection dans CIME, une déviation du faisceau vers une ligne d'Identification Basse Energie (IBE) [Lau-97-b][Kan-98][Kan-00] est possible. Elle permet d'identifier et de quantifier les noyaux radioactifs contenus dans le faisceau (noyau d'intérêt + polluants radioactifs) et donc, d'optimiser le réglage de l'ensemble cible-source.

### **I.3.2.2 Le cyclotron CIME**

Un schéma du cyclotron est donné dans la figure I-17 et son diagramme de fonctionnement est représenté dans la figure I-18. Le cyclotron CIME permet d'atteindre une gamme d'énergie, dépendant du rapport  $q_p/M_p$  du faisceau d'ions radioactifs sélectionné, pouvant aller de  $1,7 \text{ A}$  à  $24,8 \text{ A MeV}$ .



**Fig. I-17 - Schéma du cyclotron CIME**



**Fig. I-18** - Diagramme de fonctionnement de CIME : énergies possibles en sortie du cyclotron (échelle de droite) en fonction du rapport  $q_p/M_p$  (droite oblique) du faisceau d'ions radioactifs sélectionné et du rayon d'injection choisi (34 mm ou 45 mm)

La résolution en masse du cyclotron CIME est de 1/4000. L'émittance du faisceau d'ions radioactifs, à l'extraction de CIME, est d'environ  $10 \pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$  et sa dispersion en énergie d'environ 1 %. Enfin, la transmission totale du faisceau est de l'ordre de 40 %.

Finalement, le faisceau d'ions radioactifs sélectionné, après post-accélération, est envoyé vers les aires expérimentales.

### I.3.3 Le banc de tests SIRa

SIRa (Séparateur d'Ions Radioactifs) [Bri-92][Ann-93] est un banc de tests spécialement conçu pour la méthode ISOL. Il est installé dans une des salles d'expériences (D2) des aires expérimentales (cf. figure I-11). Un plan du banc de tests SIRa est donné dans la figure I-19. Ce banc de tests possède une casemate à l'intérieur de laquelle peuvent être adaptés de nouveaux ensembles cible-source ou des ensembles cible-source déjà existant. Il possède également un dipôle d'analyse (séparateur isotopique) avec une résolution en masse d'environ 1 %. Enfin, différents détecteurs peuvent être utilisés en bout de ligne afin d'identifier et de quantifier les faisceaux d'ions radioactifs produits à partir de l'ensemble cible-source installé dans la casemate.

Les ensembles cible-source de SPIRAL ont été testés, en ligne, à partir de ce banc de tests, qui sert de référence pour les taux des faisceaux d'ions radioactifs obtenus sur SPIRAL. Les nouveaux ensembles cible-source sont également testés, en ligne, à partir de ce banc de tests. La puissance maximale, de faisceau primaire, autorisée sur le banc de tests SIRa est de 400 W.

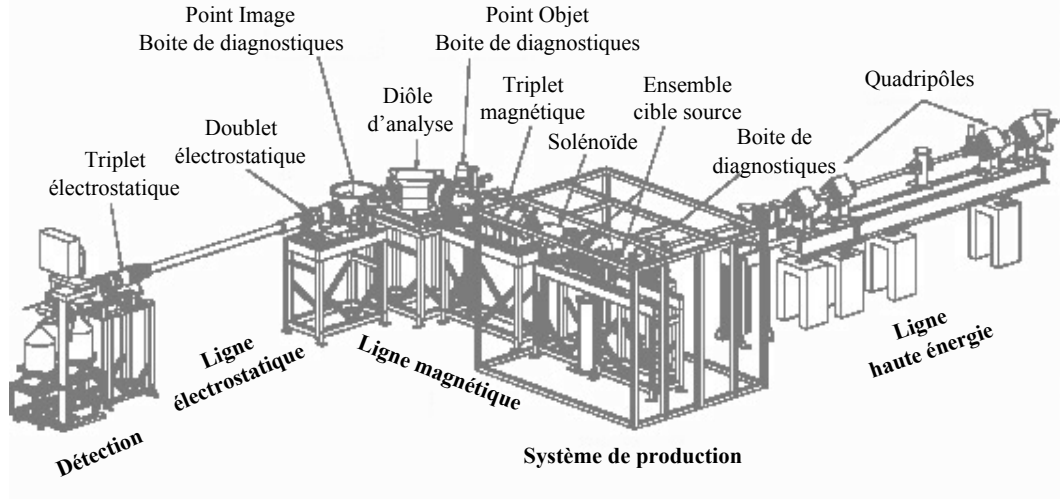


Fig. I-19 - Plan du banc de tests SIRa

## **I.4 Une nouvelle méthodologie pour caractériser les ensembles cible-source : la « méthode globale »**

La caractérisation d'un ensemble cible-source consiste à déterminer les propriétés de diffusion (coefficients d'Arrhenius), d'effusion (temps d'effusion moyen) et d'ionisation de l'ensemble. Ces propriétés dépendent de la nature de l'élément considéré. Par conséquent, pour chaque élément étudié, une caractérisation s'impose. Trois méthodologies différentes sont actuellement utilisées, au GANIL, pour caractériser les ensembles cible-source. Elles sont basées, soit sur une évolution temporelle du taux disponible, en particules par seconde, en sortie de l'ensemble cible-source, soit sur la saturation de ce même taux en régime permanent.

### **I.4.1 Evolution temporelle et saturation en régime permanent**

Soit  $\tau$ , le taux, en particules par seconde, de l'élément radioactif étudié, soit implanté dans la cible, soit produit dans la cible (cela dépend de la méthode utilisée). Si  $\tau$  est nul avant l'instant «  $t = 0$  », le taux disponible en sortie de l'ensemble cible-source,  $\tau_{\text{disponible}}(t)$ , en particules par seconde et à l'instant  $t$ , est exprimé de la manière suivante :

$$\tau_{\text{disponible}}(t) = \xi_{\text{totale}}(t) \cdot \tau \quad (\text{I-14})$$

où  $\xi_{\text{totale}}(t)$  représente l'efficacité instantanée du système à l'instant  $t$ . Elle se décompose de la manière suivante :

$$\xi_{\text{totale}}(t) = \int_{t'=0}^{t'=t-t_{\text{ion}}-t_{\text{tran}}} \xi_{\text{diff}}(t') \xi_{\text{eff}}(t-t_{\text{ion}}-t_{\text{tran}}-t') dt' \cdot \xi_{\text{ion}} e^{-\lambda t_{\text{ion}}} \cdot \xi_{\text{tran}} e^{-\lambda t_{\text{tran}}} \quad (\text{I-15})$$

où

- $\xi_{\text{diff}}(t')$  représente l'efficacité de diffusion à l'instant  $t'$  (cf. partie I.2.1.1).

- $t_{ion}$ , le temps de séjour moyen, dans la source, pendant l'ionisation de l'état de charge  $1+$  à l'état de charge  $n+$ . Pour une source créant des ions monochargés, ce temps de séjour moyen est nul. D'une manière générale,  $t_{ion} < 10$  ms.
- $t_{tran}$ , le temps de transport après extraction de la source d'ions.  $t_{tran}$  est de l'ordre de quelques  $\mu$ s.
- $\xi_{eff}(t - t_{ion} - t_{tran} - t')$ , l'efficacité d'effusion à l'instant  $t - t_{ion} - t_{tran} - t'$  (cf. partie I.2.1.2).
- $\xi_{ion}$ , l'efficacité d'ionisation à un état de charge donné.
- $e^{-\lambda t_{ion}}$ , la perte par décroissance radioactive pendant le temps de séjour moyen,  $t_{ion}$ , dans la source.
- $\xi_{tran}$ , l'efficacité de transport.
- $e^{-\lambda t_{tran}}$ , la perte par décroissance radioactive pendant le temps de transport.

L'efficacité d'ionisation est considérée comme environ constante pour un élément donné (valable pour tous les isotopes) et pour un état de charge donné (distributions en état de charge similaires). Elle peut être mesurée à partir d'un isotope stable (en utilisant une fuite calibrée). L'efficacité de transport peut également être mesurée à partir d'un isotope stable (toujours en utilisant une fuite calibrée).

Les pertes par décroissance radioactive pendant le temps de séjour moyen,  $t_{ion}$ , dans la source (correspondant au temps d'ionisation de l'état de charge  $1+$  à l'état de charge  $n+$ ) sont négligeables (pour des noyaux de  $T_{1/2} \gg 10$  ms). Celles pendant le temps de transport sont quasiment nulles. Nous négligerons donc ces deux termes de pertes par la suite.

En régime permanent, le taux disponible,  $\tau_{disponible}$ , en sortie de l'ensemble cible-source, en particules par seconde, sature suivant l'expression :

$$\tau_{disponible} = \xi_{totale} \cdot \tau = \xi_{diff} \cdot \xi_{eff} \cdot \xi_{ion} \cdot \xi_{tran} \cdot \tau \quad (I-16)$$

## **I.4.2 Les méthodologies déjà utilisées au GANIL**

Ces méthodologies sont exposées avec plus de détails dans la thèse de L. Maunoury [Mau-98].

### **I.4.2.1 La méthode "mesure directe"**

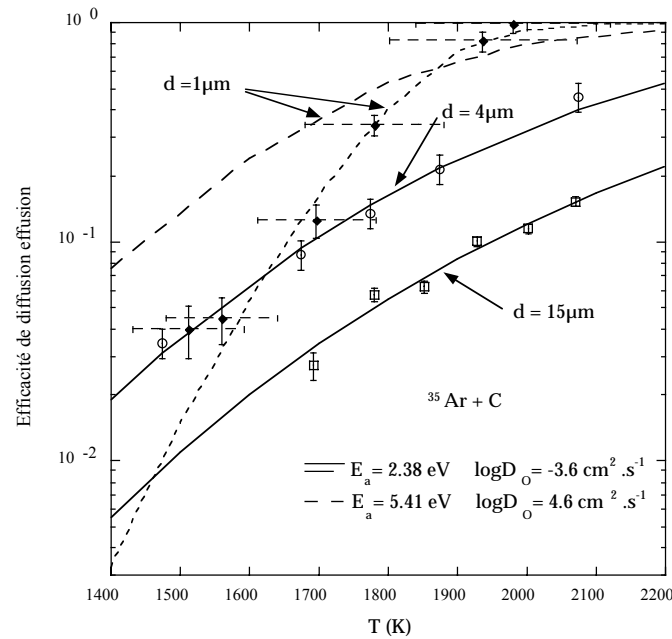
Cette méthode [Lec-97-b] est basée sur une implantation des noyaux radioactifs dans la cible, au lieu de les produire directement dans la cible à partir d'un faisceau primaire d'ions stables. Elle nécessite donc l'utilisation d'un faisceau primaire d'ions radioactifs. Au GANIL, ce faisceau est produit par fragmentation dans une cible mince à partir de l'installation SISSI (cf. figure I-11). La quantité de l'ion radioactif d'intérêt, soit  $\tau_{implanté}$ , implantée, par seconde, dans la cible et celle du même noyau d'intérêt, soit  $\tau_{disponible}$ , disponible en régime permanent, par seconde, en sortie de l'ensemble cible-source sont mesurées. Le rapport des deux taux

donne la valeur de l'efficacité totale du système, en régime permanent, qui, d'après l'équation I-16, est exprimée de la manière suivante :

$$\frac{\tau_{\text{disponible}}}{\tau_{\text{implanté}}} = \xi_{\text{totale}} = \xi_{\text{diff}} \cdot \xi_{\text{eff}} \cdot \xi_{\text{ion}} \cdot \xi_{\text{tran}} \quad (\text{I-17})$$

L'efficacité d'ionisation et l'efficacité de transport sont mesurées à partir d'une fuite calibrée contenant un isotope stable de l'élément étudié.

En effectuant des mesures pour différentes températures de cible, cette méthode permet d'accéder aux propriétés de diffusion (coefficients d'Arrhenius) et d'effusion (temps d'effusion moyen) de l'élément étudié pour l'ensemble cible-source utilisé. Par exemple, des mesures effectuées [Mau-98][Lan-01] à partir de cette méthode, avec un faisceau primaire d' $^{35}\text{Ar}$ , ont permis de caractériser les propriétés de diffusion-effusion de l'argon pour différentes cibles de l'ensemble cible-source de SPIRAL dédié à la production des faisceaux d'argon radioactif (cf. partie I.3.2.1). Ces mesures sont remémorées dans la figure I-20.



**Fig. I-20** – Résultats expérimentaux de caractérisation, pour des faisceaux d'argon radioactif, de l'ensemble cible-source de SPIRAL, pour différentes cibles en carbone (cibles constituées de grains dont le diamètre n'excède pas la valeur  $d$  indiquée sur la figure), à partir de la méthode "mesure directe". Les mesures ont été effectuées avec un faisceau primaire d' $^{35}\text{Ar}$ . La courbe en pointillés larges correspond à une extrapolation de celles en trait plein [Mau-98][Lan-01] et la courbe en pointillés fins, à une cible en carbone d'origine différente [Poc-99] de celle [Car-95] ayant servi pour les courbes en trait plein

#### I.4.2.2 La méthode "saturation du taux de production"

Cette méthode [Mau-98] est spécifique aux noyaux radioactifs à temps de vie très long (supérieur à quelques minutes pour des gaz rares). Les noyaux radioactifs sont directement

produits dans la cible à partir d'un faisceau primaire d'ions stables. La quantité de l'ion radioactif d'intérêt, soit  $\tau_{\text{disponible}}$ , disponible en régime permanent, par seconde, en sortie de l'ensemble cible-source est mesurée. Des mesures doivent être effectuées pour différentes températures de cible. Pour un temps de vie suffisamment long, la saturation du taux disponible,  $\tau_{\text{saturation}}$ , qui apparaît lorsqu'on augmente la température de la cible correspond à une efficacité de diffusion-effusion de 1. Le rapport des deux taux donne, en régime permanent, la valeur de l'efficacité de diffusion-effusion du système, soit :

$$\frac{\tau_{\text{disponible}}}{\tau_{\text{saturation}}} = \xi_{\text{diff}} \cdot \xi_{\text{eff}} \quad (\text{I-18})$$

L'ensemble des rapports des deux taux pour différentes températures de cible permet de déduire les propriétés de diffusion (coefficients d'Arrhenius) et d'effusion (temps d'effusion moyen) de l'élément étudié, pour l'ensemble cible-source utilisé.

#### **I.4.2.3 La méthode "temps de montée"**

Cette méthode [Mau-98] est la plus délicate. Elle est basée sur une mesure de la variation temporelle de la radioactivité, en sortie de l'ensemble cible-source, pour l'ion radioactif étudié, lorsque le faisceau primaire est implanté dans la cible à partir du temps «  $t = 0$  ». Dans cette méthode, les noyaux radioactifs sont directement produits dans la cible à partir d'un faisceau primaire d'ions stables.

Soit  $N(t)$ , la quantité, de l'ion radioactif étudié, implantée au niveau de la détection et n'ayant pas encore décré. Pour connaître l'expression de  $N(t)$ , l'équation différentielle suivante doit être résolue :

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\lambda N(t) + \xi_{\text{totale}}(t) \cdot \tau \quad (\text{I-19})$$

où  $\tau$  représente la quantité, en particules par seconde, de l'ion radioactif étudié produite dans la cible et  $\xi_{\text{totale}}(t)$  représente l'efficacité instantanée du système à l'instant  $t$  (cf. équation I-15 dans la partie I.4.1).

La résolution de l'équation I-19 donne l'expression suivante pour  $N(t)$  :

$$N(t) = \tau e^{-\lambda t} \int_{t'=0}^{t'=t} \xi_{\text{totale}}(t') e^{\lambda t'} dt' \quad (\text{I-20})$$

En régime permanent, cette quantité devient :

$$N = \frac{\tau}{\lambda} \xi_{\text{totale}} \quad (\text{I-21})$$

On appelle  $A_d(t)$ , la radioactivité détectée à l'instant  $t$  ( $A_d$ , lorsque  $t$  tend vers l'infini). Cette radioactivité s'exprime de la manière suivante :

$$A_d(t) = Ta(t) \cdot Re \cdot eff_d \cdot \lambda N(t) \quad (I-22)$$

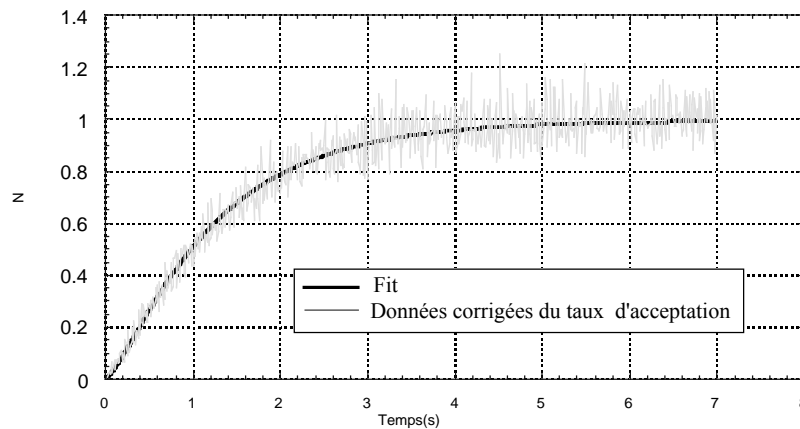
où

- $Ta(t)$  représente le taux d'acceptation de la chaîne de détection (électronique détecteur + électronique acquisition) à l'instant  $t$  ( $Ta$ , lorsque  $t$  tend vers l'infini).
- $Re$ , le rapport d'embranchement du rayonnement caractéristique de l'ion radioactif étudié.
- $eff_d$ , l'efficacité de détection de ce rayonnement depuis la zone où est implanté l'ion radioactif étudié et pour une position du détecteur donnée.

La méthode "temps de montée" consiste à mesurer la variation temporelle de la radioactivité, en sortie de l'ensemble cible-source, pour l'ion radioactif étudié, lorsqu'on implante le faisceau dans la cible à partir du temps «  $t = 0$  », à corriger cette variation temporelle par celle du taux d'acceptation de la chaîne de détection et enfin à normaliser à 1 la valeur au plateau de la variation temporelle obtenue. D'après les équations I-20, I-21 et I-22, le résultat, soit  $\tau_{\text{corrigé}}(t)$ , représente le rapport suivant :

$$\tau_{\text{corrigé}}(t) = \frac{\frac{A_d(t)}{Ta(t)}}{\frac{A_d}{Ta}} = \frac{\lambda e^{-\lambda t} \int_{t'=0}^{t'=t} \xi_{\text{totale}}(t') e^{\lambda t'} dt'}{\xi_{\text{totale}}} \quad (I-23)$$

Le résultat obtenu, par cette méthode, pour le  $^{17}\text{Ne}$  [Lan-01], avec l'ensemble cible-source de SPIRAL dédié à la production des faisceaux de néon radioactif (cf. partie I.3.2.1), est représenté dans la figure I-21.



**Fig. I-21** – Radioactivité du  $^{17}\text{Ne}$  mesurée, pour l'ensemble cible-source de SPIRAL dédié à la production des faisceaux de néon radioactif, corrigée par le taux d'acceptation et normalisée à 1 au plateau (valeur en régime permanent).  $N$  représente le rapport normalisé  $A_d(t)/Ta(t)/(A_d/Ta)$  (cf. équation I-23) [Lan-01]



Cette méthode ne permet pas d'obtenir les coefficients d'Arrhenius (propriétés de diffusion, cf. partie I.2.1.1). Par contre, elle permet d'obtenir le coefficient de diffusion de l'élément étudié, pour l'ensemble cible-source utilisé, à la température de cible pour laquelle la mesure a eu lieu. Elle permet également d'obtenir les propriétés d'effusion (temps d'effusion moyen) de cet élément pour cet ensemble cible-source.

### **I.4.3 La nouvelle méthodologie : la « méthode globale »**

Cette méthode est basée sur la mesure de la quantité de l'élément d'intérêt disponible en régime permanent, par seconde, en sortie de l'ensemble cible-source. Des mesures doivent être effectuées pour différentes températures de cible et pour différents isotopes radioactifs de cet élément.

Dans cette méthode, les noyaux radioactifs sont directement implantés dans la cible, quand cela est possible, et si ça ne l'est pas, ils sont produits dans la cible à partir d'un faisceau primaire d'ions stables. Soit  $\tau_{\text{cible}}$ , le taux, en particules par seconde, d'un isotope radioactif de l'élément étudié, implanté ou produit dans la cible. Ce taux est soit mesuré (dans le cas d'une implantation), soit déterminé à partir du modèle EPAX (cf. partie I.3.1), par exemple (dans le cas d'une production directe dans la cible). Soit  $\tau_{\text{disponible}}$ , la quantité du même isotope radioactif de l'élément d'intérêt, disponible en régime permanent, par seconde, en sortie de l'ensemble cible-source. Le rapport des deux taux donne la valeur de l'efficacité totale du système, en régime permanent, qui, d'après l'équation I-16, est exprimée de la manière suivante :

$$\frac{\tau_{\text{disponible}}}{\tau_{\text{cible}}} = \xi_{\text{totale}} = \xi_{\text{diff}} \cdot \xi_{\text{eff}} \cdot \xi_{\text{ion}} \cdot \xi_{\text{tran}} \quad (\text{I-24})$$

Le rapport des deux taux, pour différents isotopes radioactifs de l'élément étudié (par exemple, pour des isotopes radioactifs du sodium) et pour différentes températures de cible, permet d'accéder aux propriétés de diffusion (coefficients d'Arrhenius) et d'effusion (temps d'effusion moyen) de l'élément étudié (par exemple, le sodium) pour l'ensemble cible-source utilisé.

Pour extraire les paramètres d'intérêt, c'est-à-dire, les coefficients d'Arrhenius pour la diffusion, l'enthalpie d'adsorption pour l'effusion et les efficacités d'ionisation, la méthode mathématique des moindres carrés est utilisée. De cette façon, les quantités recherchées sont obtenues simultanément. Pour cela, un programme basé sur des sous-routines [Pre-88] de minimisation d'une fonction à plusieurs variables a été développé. Les paramètres sont choisis de façon à minimiser la valeur de  $\chi^2$  [Bev-69] qui est exprimé de la manière suivante :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^N \frac{[f(i) - f_{\text{mesurée}}(i)]^2}{\sigma(i)^2} \quad (\text{I-25})$$

où

- N représente le nombre de données mesurées (nombre de rapports  $\tau_{\text{disponible}}/\tau_{\text{cible}}$ ).

- $f(i)$ , la fonction paramétrique à ajuster sur les données mesurées (fonction paramétrique de l'efficacité totale du système).
- $f_{\text{mesurée}}(i)$ , les données mesurées (rapports  $\tau_{\text{disponible}}/\tau_{\text{cible}}$ ).
- $\sigma(i)$ , les barres d'erreur (écart-type) des données mesurées (barres d'erreur des rapports  $\tau_{\text{disponible}}/\tau_{\text{cible}}$ ).

La fiabilité du résultat est donnée par la valeur du  $\chi^2$  réduit. Ce dernier est exprimé de la manière suivante :

$$\chi^2_{\text{réduit}} = \frac{\chi^2}{N - p} \quad (\text{I-26})$$

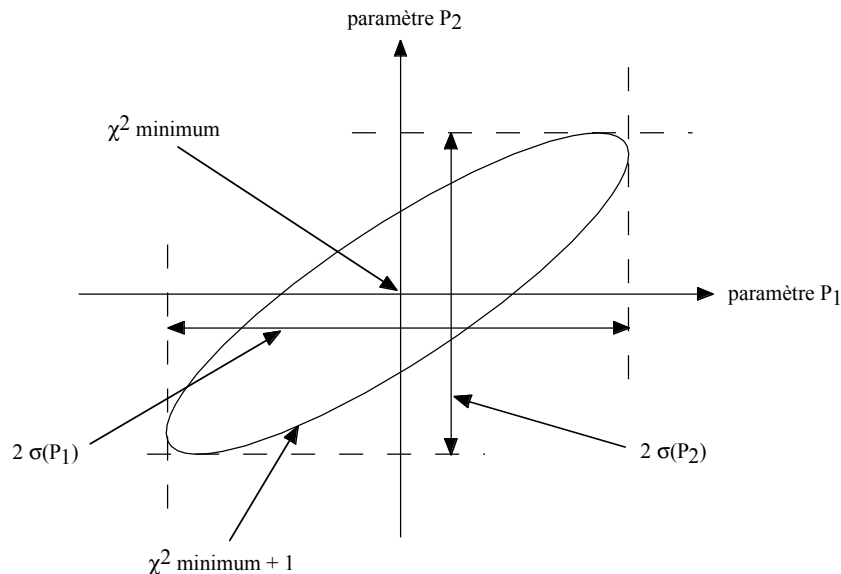
où  $p$  représente le nombre de paramètres à ajuster (nombre de variables).  $N - p$  représente donc le nombre de degrés de liberté. Plus la valeur de  $\chi^2$  réduit est faible, plus les paramètres obtenus sont fiables.

#### **I.4.4 Détermination des barres d'erreur liées à la « méthode globale »**

##### **I.4.4.1 Détermination par la méthode des moindres carrés**

Cette méthode [Bev-69][Pre-88] n'est applicable que dans le cas où les paramètres sont extraits par la méthode des moindres carrés. Pour obtenir l'écart-type pour chacun des paramètres, il faut déterminer la surface fermée  $\chi^2_{\text{min}} + 1$  dans l'espace à  $p$  dimensions, où  $\chi^2_{\text{min}}$  représente la valeur minimale obtenue pour  $\chi^2$ . La projection de cette surface sur chacune des dimensions permet d'obtenir les barres d'erreur (écart-type) pour chacun des paramètres.

Un exemple, pour un espace à deux dimensions (deux paramètres), est donné dans la figure I-22. Plus le nombre de paramètres est élevé, plus la surface  $\chi^2_{\text{min}} + 1$  est difficile à obtenir.

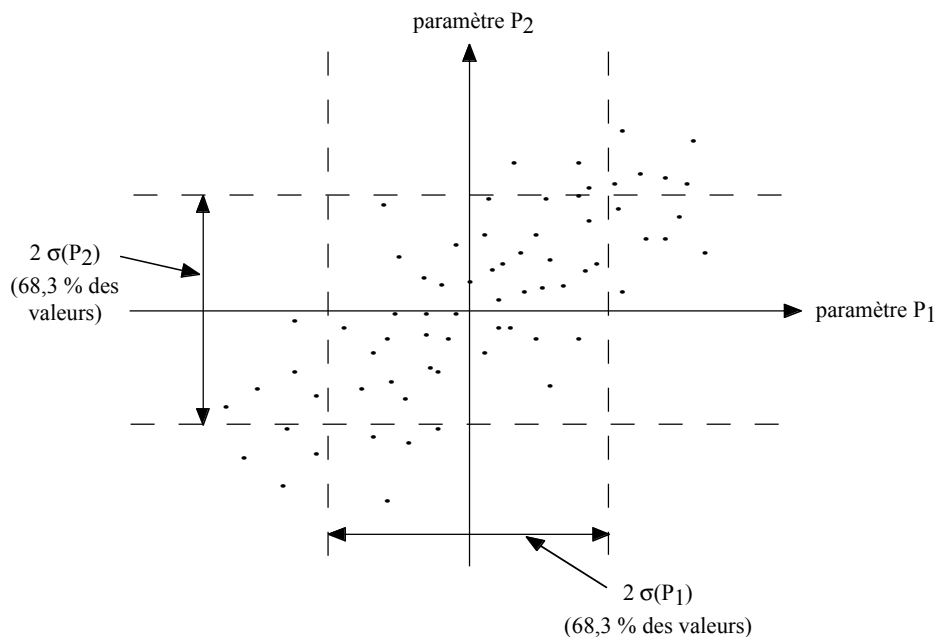


**Fig. I-22 – Détermination des barres d'erreur par la méthode des moindres carrés**

#### **I.4.4.2 Détermination par la méthode de Monté-Carlo**

Cette méthode [Bev-69][Pre-88] est applicable quelle que soit celle utilisée pour obtenir les valeurs des paramètres. Elle consiste à effectuer un tirage aléatoire, pour chacune des données, suivant l'écart-type expérimental de chacune d'elles. On obtient, par ce tirage aléatoire, un nouvel ensemble de  $N$  données, à laquelle on applique la même méthode d'extraction des paramètres. L'opération doit être répétée plusieurs fois afin d'obtenir suffisamment de statistique. L'écart-type, pour chacun des paramètres, est obtenu à partir de la distribution des valeurs de chacun des paramètres résultant du tirage aléatoire de données par la méthode de Monté-Carlo.

Un exemple, pour un espace à deux dimensions (deux paramètres), est donné dans la figure I-23.



**Fig. I-23** – Détermination des barres d'erreur par la méthode de Monté-Carlo

Dans cette thèse, lorsque la « méthode globale » est utilisée, les barres d'erreur des paramètres sont déterminées à partir de la méthode de Monté-Carlo.

### **I.4.5 Mise en application théorique de la « méthode globale » pour un ensemble cible-source fictif**

#### **I.4.5.1 Données fictives utilisées**

Afin de tester la validité de la méthode et de vérifier principalement sa convergence, ainsi que l'absence d'ambiguïtés, une simulation de l'efficacité d'un ensemble cible-source, dont les paramètres ont été choisis (ensemble fictif), a été effectuée.

On choisit un ensemble cible-source fictif dont l'efficacité totale, en régime permanent, est exprimée de la manière suivante :

$$\xi_{\text{totale}} = \left( \frac{6}{\pi^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{k^2 + \frac{\lambda \rho^2}{\pi^2 D_0 e^{\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right)}}} \right) \left( \frac{1}{1 + \lambda \chi \left( D_{\text{vol}} \sqrt{\frac{m_n A}{3 k_B T}} + t_0 e^{\frac{\Delta H_a}{k_B T}} \right)} \right) \left( \frac{\omega \chi}{\omega \chi + \frac{g_0}{g_+} e^{\frac{I - W_s}{k_B T}}} \right) \cdot \text{Cste} \quad (\text{I-27})$$

où

- le premier terme entre parenthèses représente l'efficacité de diffusion hors d'un grain de rayon  $\rho$  (cf. partie I.2.1.1).
- le second terme entre parenthèses, l'efficacité d'effusion (cf. partie I.2.1.2).
- le troisième terme entre parenthèses, l'efficacité d'ionisation d'une source à cavité chaude (cf. partie III.1.2.2).
- Cste, l'efficacité de transport.

On choisit :

- un rayon  $\rho$  de grain égal à 1  $\mu\text{m}$  ( $\rho$  est égal à 0,5  $\mu\text{m}$  pour les cibles de SPIRAL).
- un nombre moyen de collisions,  $\chi$ , égal à 800.
- une distance moyenne parcourue entre deux collages,  $D_{\text{vol}}$ , égale à 1 cm.
- un rapport  $g_0/g_+$  égal à 2 (valeur pour les alcalins).
- un potentiel de première ionisation,  $I$ , égal à 5,392 eV (valeur pour le lithium).
- un travail de sortie,  $W_s$ , égal à 5,0 eV (valeur pour le carbone).

$\text{Log}(D_0)$ ,  $E_a$ ,  $t_0$ ,  $\Delta H_a$ ,  $\omega$  et Cste représentent les paramètres. Pour créer les données fictives, on choisit :

- un coefficient d'Arrhenius  $D_0$  égal à 10  $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  ( $\log(D_0) = 1 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ).
- un coefficient d'Arrhenius  $E_a$  égal à 100 kCal/mol (soit environ 4,3 eV).
- une période de vibration  $t_0$  égale à  $2,5 \cdot 10^{-15}$  s ( $t_0 = 2,4 \cdot 10^{-15}$  s pour le collage sur des parois en tantale).
- une enthalpie d'adsorption  $\Delta H_a$  égale à 5 eV.
- une probabilité  $\omega$  égale à 0,2 (probabilité qu'une particule ionisée, par ionisation de surface, sorte de la source à cavité chaude en restant ionisée).
- une efficacité de transport, Cste, égale à 0,5.

Pour créer les données fictives, on choisit un élément quelconque pour lequel la caractérisation de ses faisceaux, pour l'ensemble cible-source fictif, donne les valeurs des paramètres détaillées ci-dessus. On invente les isotopes suivants pour cet élément :

- un isotope possédant 15 nucléons et de demi-vie  $T_{1/2} = 10$  s.
- un isotope possédant 16 nucléons et de demi-vie  $T_{1/2} = 1$  s.
- un isotope possédant 17 nucléons et de demi-vie  $T_{1/2} = 0,1$  s.
- un isotope possédant 18 nucléons et de demi-vie  $T_{1/2} = 0,01$  s.

Les données fictives d'efficacité totale, extraites pour différentes températures de l'ensemble cible-source, sont représentées dans le tableau I-6.

	T = 1500 K	T = 1600 K	T = 1700 K	T = 1800 K	T = 1900 K	T = 2000 K
A = 15	$7,8 \cdot 10^{-7}$	$2,7 \cdot 10^{-5}$	$5,8 \cdot 10^{-4}$	$8,0 \cdot 10^{-3}$	$6,2 \cdot 10^{-2}$	$2,1 \cdot 10^{-1}$
A = 16	$2,0 \cdot 10^{-8}$	$8,1 \cdot 10^{-7}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$	$2,9 \cdot 10^{-4}$	$3,1 \cdot 10^{-3}$	$2,3 \cdot 10^{-2}$
A = 17		$2,1 \cdot 10^{-8}$	$5,5 \cdot 10^{-7}$	$9,0 \cdot 10^{-6}$	$1,1 \cdot 10^{-4}$	$9,3 \cdot 10^{-4}$
A = 18			$1,3 \cdot 10^{-8}$	$2,6 \cdot 10^{-7}$	$3,2 \cdot 10^{-6}$	$3,0 \cdot 10^{-5}$

**Tab. I-6** – Données fictives d'efficacité totale extraites à partir des isotopes de l'élément fictif et de l'ensemble cible-source fictif

#### **I.4.5.2 Convergence de la méthode**

A partir des données fictives d'efficacité totale (à lesquelles, une barre d'erreur de 20 % a été attribuée), nous avons étudié la convergence de la « méthode globale ». Les conclusions sont les suivantes :

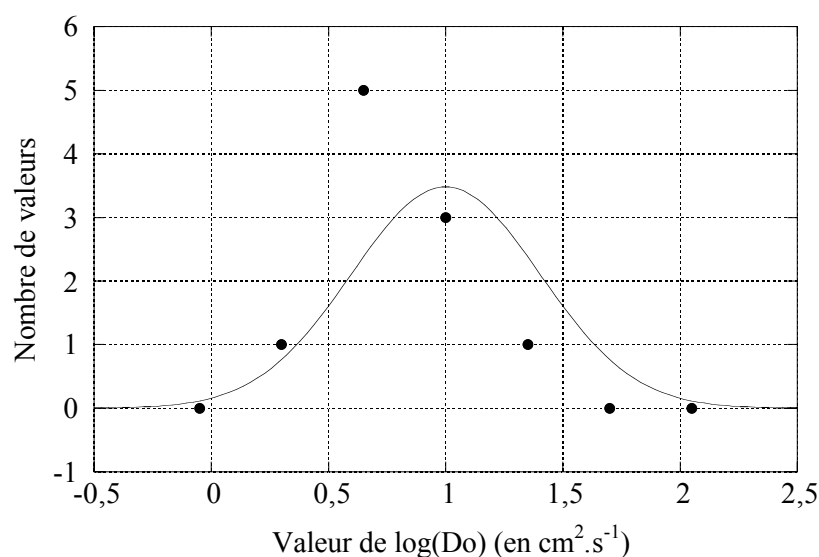
- $\log(D_0)$ ,  $E_a$ ,  $\Delta H_a$  et Cste convergent toujours vers les valeurs théoriques, quelles que soient les valeurs initiales choisies pour ces paramètres. Cependant, si les valeurs initiales choisies sont trop éloignées des valeurs de convergence, la méthode diverge. Les valeurs solutions obtenues par cette méthode sont donc uniques.
- insensibilité totale au paramètre  $t_0$  : la valeur de  $t_0$  reste figée à la valeur initiale injectée, quelle que soit cette valeur. Ce comportement doit être contrôlé à chaque fois que la méthode est utilisée et que  $t_0$  est un des paramètres. Une solution envisageable est de fixer le paramètre  $t_0$  et d'étudier la convergence des autres paramètres sur l'intervalle des valeurs probables pour  $t_0$ .
- la convergence du paramètre  $\omega$  se fait toujours vers la valeur théorique, quelle que soit la valeur injectée, mais une ambiguïté importante est présente (variation faible du  $\chi^2$ ). Au niveau des barres d'erreur, cela va se traduire par une erreur élevée pour  $\omega$ . Ce paramètre ne concerne que les sources à cavité chaude. Ce comportement doit donc être contrôlé à chaque fois qu'une telle source fait partie de l'ensemble cible-source et que la « méthode globale » est utilisée.

#### **I.4.5.3 Détermination des barres d'erreur des paramètres**

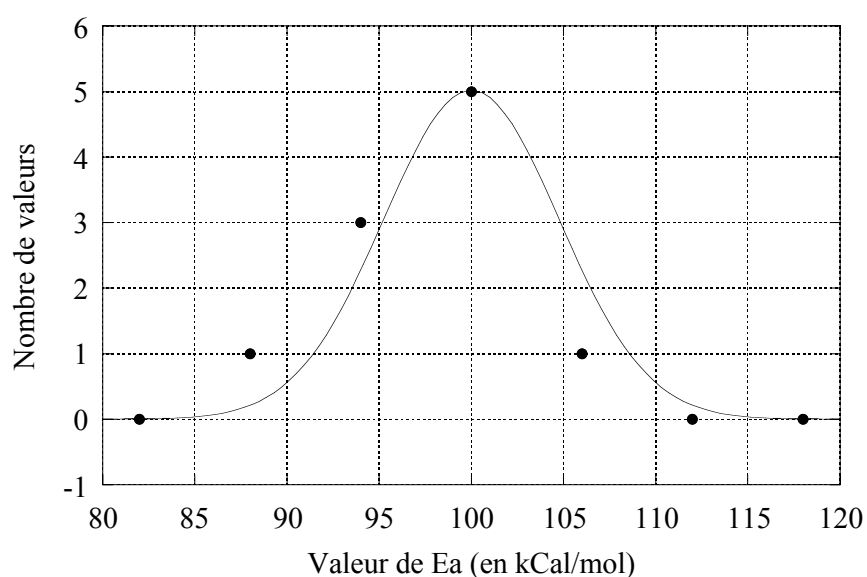
Les barres d'erreur des paramètres, pour l'élément fictif et pour l'ensemble cible-source fictif, liées à la méthode et à la précision des données fictives, sont déterminées par la méthode de Monté-Carlo (cf. partie I.4.4.2). La méthode consiste à effectuer un tirage aléatoire gaussien de données d'efficacité totale suivant l'écart-type de chacune des données expérimentales (efficacités totales fictives) et à extraire les paramètres de convergence, correspondant à ces nouvelles données, à partir de la même méthode d'extraction des paramètres (« méthode globale »). La distribution obtenue pour chacun des paramètres, en

répétant l'opération plusieurs fois afin d'obtenir suffisamment de statistique, est gaussienne et permet d'avoir accès à l'écart-type de chacun des paramètres, associé à la méthode et à la précision des données expérimentales (efficacités totales fictives).

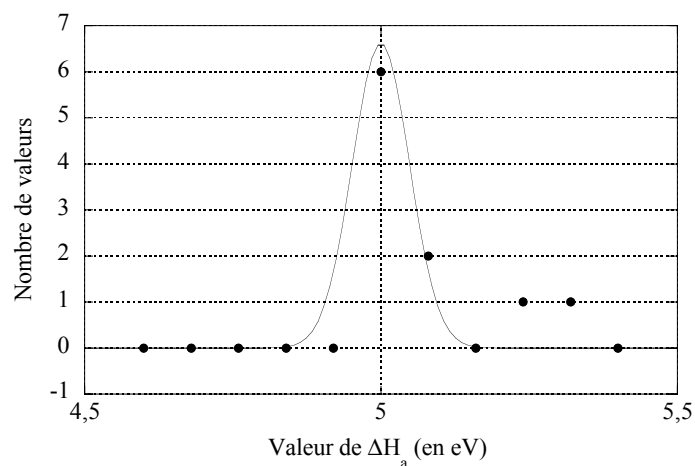
Dans le cadre du test de la « méthode globale », l'opération de tirage aléatoire (méthode de Monté-Carlo) est répétée 10 fois. Cela permet d'obtenir la valeur des écarts-types à 30 % près. Les courbes gaussiennes, déduites des histogrammes de répartition des valeurs obtenus pour chacun des paramètres à partir de la méthode de Monté-Carlo, sont représentées dans les figures I-24, I-25, I-26, I-27 et I-28 pour, respectivement, les paramètres  $\log(D_0)$ ,  $E_a$ ,  $\Delta H_a$ ,  $\log(\omega)$  et Cste.



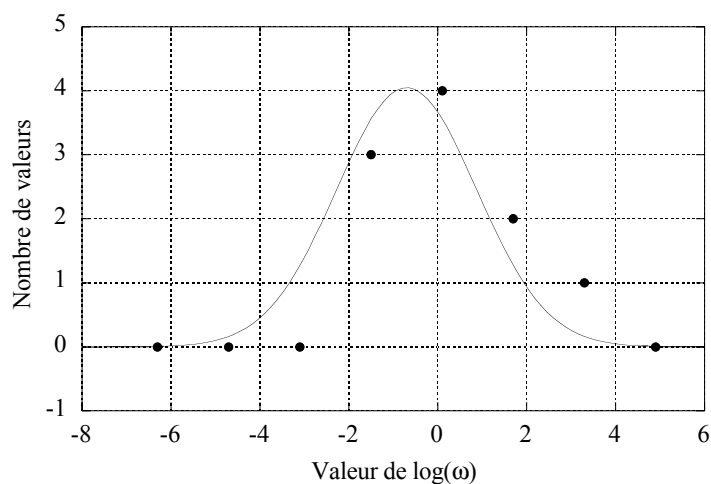
**Fig. I-24** – Courbe gaussienne déduite d'un histogramme de répartition des valeurs de  $\log(D_0)$  obtenu par la méthode de Monté-Carlo



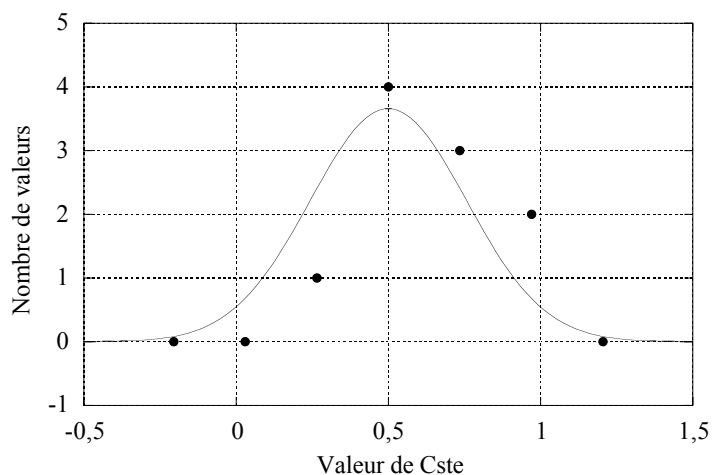
**Fig. I-25** – Courbe gaussienne déduite d'un histogramme de répartition des valeurs de  $E_a$  obtenu par la méthode de Monté-Carlo



**Fig. I-26** – Courbe gaussienne déduite d'un histogramme de répartitions des valeurs de  $\Delta H_a$  obtenu par la méthode de Monté-Carlo



**Fig. I-27** – Courbe gaussienne déduite d'un histogramme de répartitions des valeurs de  $\log(\omega)$  obtenu par la méthode de Monté-Carlo



**Fig. I-28** – Courbe gaussienne déduite d'un histogramme de répartition des valeurs de Cste obtenu par la méthode de Monté-Carlo

Pour l'ensemble des paramètres, les barres d'erreur suivantes ont été obtenues :

- $\log(D_0) = 1,0 \pm 0,4 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
- $E_a = 100 \pm 5 \text{ kCal/mol}$
- $\Delta H_a = 5,00 \pm 0,05 \text{ eV}$
- $\log(\omega) = -0,7 \pm 1,6$
- $C_{ste} = 0,5 \pm 0,3$
- $t_0$  est indéterminé, car sa valeur reste figée sur la valeur initiale injectée

L'étude de la convergence de la « méthode globale » laissait envisager une barre d'erreur élevée pour le paramètre  $\omega$  (cf. partie I.4.5.2). Cela est confirmé par la détermination des barres d'erreur.

Comme le paramètre  $t_0$  reste figé sur la valeur initiale injectée, la fixation, dans le programme, de ce paramètre ne modifie pas la convergence. Par contre, ce n'est pas le cas pour les autres paramètres.

La nouvelle méthodologie (« méthode globale »), présentée dans ce chapitre, est utilisée plusieurs fois au cours de cette thèse (dans le chapitre II et dans le chapitre III) pour caractériser des ensembles cible-source pour la production de faisceaux d'ions radioactifs de certains éléments (néon, sodium ou lithium).





# CHAPITRE II

## *La production de faisceaux d'ions radioactifs avec SPIRAL*

Ce chapitre est consacré aux expériences réalisées, dans le cadre de cette thèse, à partir des ensembles cible-source de SPIRAL, soit pour obtenir des prévisions d'intensités de faisceaux de gaz rares radioactifs dans le cadre de la prévision du démarrage de SPIRAL, soit pour obtenir de nouveaux faisceaux d'ions radioactifs pour SPIRAL.

Dans la première partie de ce chapitre, les taux de production de faisceaux de néon radioactif, mesurés dans le cadre de la prévision du démarrage de SPIRAL, sont présentés. Et la nouvelle méthodologie (cf. la « méthode globale » dans la partie I.4), pour caractériser les ensembles cible-source, est appliquée à l'ensemble cible-source de SPIRAL pour la production des faisceaux de néon radioactif.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, les résultats expérimentaux, obtenus dans le cadre de cette thèse, liés à la recherche de nouveaux faisceaux d'ions radioactifs (oxygène, azote et fluor) pour SPIRAL sont présentés. Enfin, ce chapitre est terminé par de très brèves perspectives.

### **II.1 Le démarrage de SPIRAL : les faisceaux de gaz rares radioactifs**

Le premier faisceau d'ions radioactifs choisi pour le démarrage de SPIRAL était un faisceau de  $^{18}\text{Ne}$  [Vil-02]. Bien avant ce démarrage, les mesures des taux de production de faisceaux de néon radioactif [Mau-94] avaient été effectuées avec un ensemble cible-source légèrement différent de celui choisi [Lan-01] pour le démarrage de SPIRAL :

- la cible en carbone était constituée de grains dont la taille ne dépassait pas 4  $\mu\text{m}$  (au lieu de 1  $\mu\text{m}$  maintenant, cf. partie I.3.2.1) et était fabriquée par l'industrie Carbone Lorraine [Car-95] (au lieu de Poco Graphite [Poc-99] maintenant, cf. idem).

- le chauffage de la cible était effectué par un système de chauffage externe (au lieu d'un système de chauffage par l'axe maintenant, cf. partie I.3.2.1).
- la source utilisée était une source ECR3 (au lieu de NANOGAN III maintenant, cf. partie I.3.2.1).

Les taux de production des faisceaux de néon radioactif, avec l'ensemble cible-source choisi pour le démarrage de SPIRAL, étaient estimés au minimum égaux à ceux mesurés par le passé [Mau-94] (en raison de l'augmentation de l'efficacité de diffusion dans un grain lorsqu'on diminue le rayon du grain, cf. fin de la partie I.2.1.1). Quelques mois avant le démarrage de SPIRAL, nous avons effectué - dans le cadre de cette thèse - des mesures, sur deux à trois jours, du taux de production d'un faisceau de  $^{18}\text{Ne}$  à partir de l'ensemble cible-source de SPIRAL pour, d'une part, vérifier les taux attendus et, d'autres parts, montrer la fiabilité dans le temps du taux de production d'un faisceau de  $^{18}\text{Ne}$ . Ces mesures se sont déroulées sur le banc de tests SIRa (cf. partie I.3.3). Cette expérience a permis également de mesurer les taux de production des faisceaux de  $^{17}\text{Ne}$  et de  $^{19}\text{Ne}$ . Nous allons donc exposer les résultats des mesures effectuées sur SIRa et montrer les prévisions, pour SPIRAL, que nous en avons déduites.

### **II.1.1 Mesures, sur SIRa, des taux de production de faisceaux de néon radioactif**

L'expérience a eu lieu du 30 mars au 2 avril 2001 dans la salle d'expérience SIRa. Le faisceau primaire choisi était un faisceau de  $^{20}\text{Ne}$  de 95.A MeV. Ce choix est optimal, aux énergies du GANIL, pour la production des noyaux de néon riches en protons. L'ensemble cible-source utilisé était celui de SPIRAL dédié à la production des faisceaux de néon, d'argon et de krypton radioactifs (cf. partie I.3.2.1). La puissance déposée par le faisceau primaire dans la cible, limitée à 400W dans la salle d'expérience SIRa, variait entre 300 et 400 W pendant l'expérience.

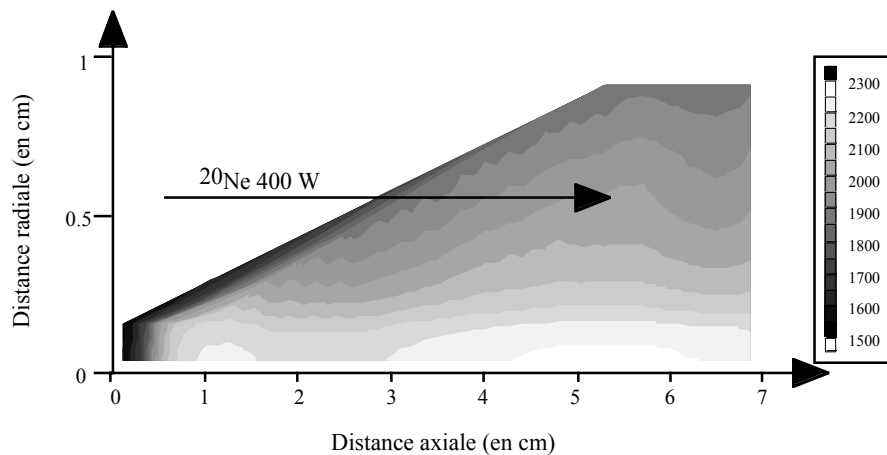
La température de la cible, liée à cette puissance déposée, est insuffisante pour faciliter correctement la diffusion des éléments produits dans la cible. C'est pourquoi, celle-ci était chauffée par l'axe avec une puissance de chauffage annexe d'environ 1500 W (cf. possibilité de chauffage de la cible, dans la partie I.3.2.1). La distribution en température de la cible, simulée avec le code GANIL [Lic-98], est schématisée dans la figure II-1.

#### **II.1.1.1 Méthodes de mesure utilisées**

Les mesures des taux de production de faisceaux de différents isotopes radioactifs du néon ont été effectuées grâce à la mise en place de détecteurs appropriés dans la zone détection de SIRa (cf. figure I-19 dans la partie I.3.3) :

- les faisceaux de  $^{18}\text{Ne}$  ont été quantifiés, à l'aide d'un détecteur Germanium, par la raie  $\gamma$  caractéristique, d'énergie 1041,5 keV, observée lors de la décroissance radioactive du  $^{18}\text{Ne}$  ( $T_{1/2} = 1,67$  s).

- les faisceaux de  $^{19}\text{Ne}$  ont été quantifiés avec le même détecteur, mais à partir de la raie  $\gamma$  d'énergie 511 keV (il n'y a pas d'émission de rayonnement  $\gamma$  caractéristique lors de la décroissance radioactive de ce noyau) correspondant aux  $\gamma$  d'annihilation du positron émis lors de la décroissance  $\beta^+$  du  $^{19}\text{Ne}$  ( $T_{1/2} = 17,22$  s). Les mesures, pour le  $^{19}\text{Ne}$ , ont nécessité l'extraction du bruit de fond à 511 keV.
- les faisceaux de  $^{17}\text{Ne}$  ont été mesurés suivant deux modes de détection différents. Le premier, exploitant le même détecteur Germanium, utilise le rayonnement  $\gamma$  caractéristique, d'énergie 495,3 keV, observé lors de la décroissance radioactive du  $^{17}\text{Ne}$  ( $T_{1/2} = 109$  ms). En raison d'une ambiguïté de la valeur du rapport d'embranchement de cette raie  $\gamma$ , nous avons extrait ce dernier de deux mesures expérimentales [Bor-93][Oza-98], soit un rapport d'embranchement de  $1,61 \pm 0,13$  %. Le deuxième mode de détection est basé sur la détection des protons retardés émis lors de la décroissance radioactive du  $^{17}\text{Ne}$ . Une jonction silicium détecte les protons et mesure leur énergie. Une deuxième jonction, placée derrière la première, élimine, par anti-coïncidence, une partie du bruit de fond (rayonnement  $\beta$ ). Les rapports d'embranchement, correspondant aux différentes énergies des protons retardés émis, sont connus par les travaux expérimentaux de Hardy et al. [Har-71].



**Fig. II-1** - Simulation, avec le code GANIL [Lic-98], de la distribution en température de la cible, lorsqu'on implante un faisceau primaire de  $^{20}\text{Ne}$  de 400 W et qu'on associe une puissance de chauffage, par l'axe, de la cible d'environ 1500 W. Les températures indiquées dans la légende sont en Kelvin

### II.1.1.2 Taux de production des faisceaux de $^{17}\text{Ne}$ , $^{18}\text{Ne}$ et $^{19}\text{Ne}$

Les taux de production moyens, des faisceaux de  $^{17}\text{Ne}$ ,  $^{18}\text{Ne}$  et  $^{19}\text{Ne}$  obtenus, sont reportés respectivement dans les tableaux II-1, II-2 et II-3.

Les incertitudes des mesures de taux de production des faisceaux de  $^{17}\text{Ne}$  sont très élevées lorsque la méthode de détection utilisée est la mesure du pic  $\gamma$  à 495,3 keV. Cette constatation est liée à la difficulté d'extraction de ce pic du bruit de fond Compton, dans le détecteur, du rayonnement  $\gamma$  à 511 keV (lui-même correspondant aux  $\gamma$  d'annihilation du positron émis lors de la décroissance  $\beta^+$  du  $^{17}\text{Ne}$ ).

état de charge mesuré	taux de production moyen normalisé à 400 W	incertitude globale en %	méthode de mesure utilisée
$^{17}\text{Ne}^{3+}$	$2,9 \cdot 10^5$ p/s	51	pic $\gamma$ à 495,3 keV
$^{17}\text{Ne}^{4+}$	$4,5 \cdot 10^4$ p/s	38	pic $\gamma$ à 495,3 keV
$^{17}\text{Ne}^{5+}$	$8,1 \cdot 10^4$ p/s	34	pic $\gamma$ à 495,3 keV
$^{17}\text{Ne}^{6+}$	$4,0 \cdot 10^4$ p/s	19	pic $\gamma$ à 495,3 keV
$^{17}\text{Ne}^{7+}$	$1,3 \cdot 10^4$ p/s	14	pic $\gamma$ à 495,3 keV
$^{17}\text{Ne}^{8+}$	$3,7 \cdot 10^3$ p/s	23	pic $\gamma$ à 495,3 keV
	$2,5 \cdot 10^3$ p/s	1	pics protons
$^{17}\text{Ne}^{9+}$	$2,4 \cdot 10^1$ p/s	4	pics protons

**Tab. II-1** - Taux de production moyens, en particules par seconde, des faisceaux de  $^{17}\text{Ne}$  à différents états de charge. Ces taux sont normalisés à 400 W de faisceau primaire (puissance maximale autorisée sur SIRa)

état de charge mesuré	taux de production moyen normalisé à 400 W	incertitude globale en %
$^{18}\text{Ne}^{2+}$	$1,7 \cdot 10^7$ p/s	7
$^{18}\text{Ne}^{4+}$	$9,0 \cdot 10^6$ p/s	5
$^{18}\text{Ne}^{5+}$	$9,8 \cdot 10^6$ p/s	6
$^{18}\text{Ne}^{7+}$	$1,6 \cdot 10^6$ p/s	8
$^{18}\text{Ne}^{8+}$	$3,7 \cdot 10^5$ p/s	9
$^{18}\text{Ne}^{10+}$	$2,0 \cdot 10^3$ p/s	17

**Tab. II-2** - Taux de production moyens, en particules par seconde, des faisceaux de  $^{18}\text{Ne}$  à différents états de charge. Ces taux sont normalisés à 400 W de faisceau primaire (puissance maximale autorisée sur SIRa)

état de charge mesuré	taux de production moyen normalisé à 400 W	incertitude globale en % (sauf celle de la pollution liée au bruit de fond)
$^{19}\text{Ne}^{1+}$	$2,0 \cdot 10^8$ p/s	6
$^{19}\text{Ne}^{2+}$	$1,1 \cdot 10^8$ p/s	6
$^{19}\text{Ne}^{3+}$	$9,4 \cdot 10^7$ p/s	6
$^{19}\text{Ne}^{4+}$	$7,8 \cdot 10^7$ p/s	5
$^{19}\text{Ne}^{5+}$	$7,2 \cdot 10^7$ p/s	6
$^{19}\text{Ne}^{6+}$	$2,9 \cdot 10^7$ p/s	5
$^{19}\text{Ne}^{7+}$	$1,5 \cdot 10^7$ p/s	5

**Tab. II-3** - Taux de production moyens, en particules par seconde, des faisceaux de  $^{19}\text{Ne}$  à différents états de charge. Ces taux sont normalisés à 400 W de faisceau primaire (puissance maximale autorisée sur SIRa)

### **II.1.1.3 Comparaison des taux de production dans la cible avec les taux de production des faisceaux mesurés**

Le nombre de noyaux radioactifs produits, par seconde, dans la cible est obtenu, au GANIL, par l'équation I-13 (cf. partie I.3.1) basée sur la paramétrisation d'EPAX [Süm-00]. Les taux de  $^{17}\text{Ne}$ ,  $^{18}\text{Ne}$  et  $^{19}\text{Ne}$  produits dans la cible sont comparés, dans le tableau II-4, avec les taux expérimentaux de production des faisceaux à l'état de charge 4+.

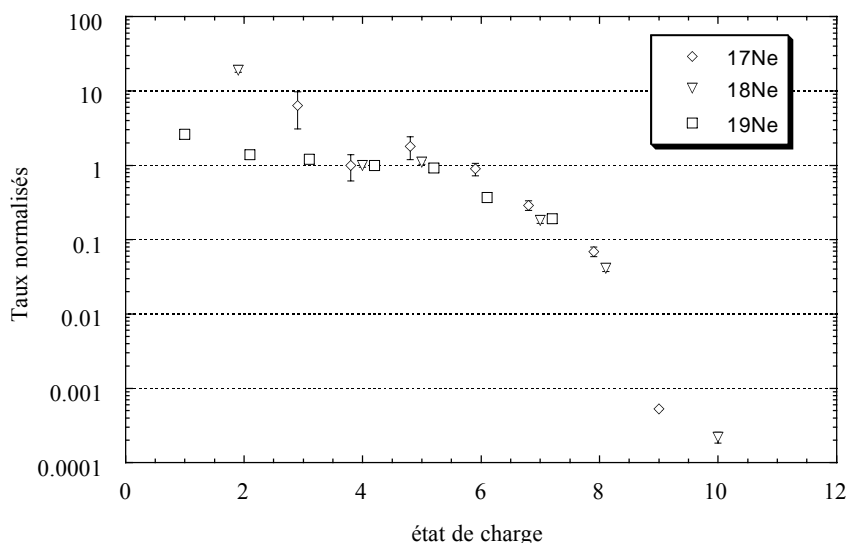
	taux de production théorique du noyau dans la cible	taux de production expérimental du faisceau à l'état de charge 4+	efficacité totale déduite (rapport des deux taux)
$^{17}\text{Ne}$ ( $T_{1/2} = 109$ ms)	$1,6 \cdot 10^7$ p/s	$4,5 \cdot 10^4$ p/s	$2,8 \cdot 10^{-3}$
$^{18}\text{Ne}$ ( $T_{1/2} = 1,67$ s)	$2,4 \cdot 10^8$ p/s	$9,0 \cdot 10^6$ p/s	$3,7 \cdot 10^{-2}$
$^{19}\text{Ne}$ ( $T_{1/2} = 17,22$ s)	$2,4 \cdot 10^9$ p/s	$7,8 \cdot 10^7$ p/s	$3,3 \cdot 10^{-2}$

**Tab. II-4** – Comparaison des taux expérimentaux de production des faisceaux de  $^{17}\text{Ne}^{4+}$ ,  $^{18}\text{Ne}^{4+}$  et  $^{19}\text{Ne}^{4+}$  avec les taux de production dans la cible obtenus par EPAX [Süm-00], pour 400 W de faisceau primaire

L'efficacité totale du système pour la production d'un faisceau à l'état de charge 4+ (rapport du taux expérimental de production du faisceau à l'état de charge 4+ sur le taux produit dans la cible) est environ la même (environ 3,5 %) pour la production d'un faisceau de  $^{18}\text{Ne}^{4+}$  ( $T_{1/2} = 1,67$  s) et celle d'un faisceau de  $^{19}\text{Ne}^{4+}$  ( $T_{1/2} = 17,22$  s). Par contre, l'efficacité totale du système pour la production d'un faisceau de  $^{17}\text{Ne}^{4+}$  ( $T_{1/2} = 109$  ms) est environ 10 fois plus faible que celles obtenues pour la production des faisceaux des deux noyaux précédents. L'efficacité totale du système commence donc à diminuer sensiblement pour des noyaux à temps de vie de l'ordre de la centaine de milliseconde.

### **II.1.1.4 Comparaison des distributions en état de charge du $^{17}\text{Ne}$ , $^{18}\text{Ne}$ et $^{19}\text{Ne}$**

Les distributions en état de charge obtenues pour le  $^{17}\text{Ne}$ ,  $^{18}\text{Ne}$  et  $^{19}\text{Ne}$  sont comparées dans la figure II-2. Les distributions sont très similaires pour le  $^{17}\text{Ne}$  ( $T_{1/2} = 109$  ms) et le  $^{18}\text{Ne}$  ( $T_{1/2} = 1,67$  s). La différence observée pour la distribution en état de charge du  $^{19}\text{Ne}$  ( $T_{1/2} = 17,22$  s) est liée à un problème expérimental de pollution sur la raie  $\gamma$  d'énergie 511 keV utilisée pour quantifier le  $^{19}\text{Ne}$  : une pollution gazeuse du  $^{19}\text{Ne}$  a été observée. Cette pollution gazeuse est présente pour tous les isotopes du néon, mais en raison de la demi-vie plus longue du  $^{19}\text{Ne}$ , la pollution gazeuse de ce noyau, implantée pendant une mesure, est encore présente pendant la mesure suivante. La pollution gazeuse du  $^{19}\text{Ne}$  fausse la distribution en état de charge obtenue pour ce noyau par une surestimation des états de charge les plus élevés.



**Fig. II-2** - Comparaison des distributions en état de charge obtenues pour le  $^{17}\text{Ne}$ ,  $^{18}\text{Ne}$  et  $^{19}\text{Ne}$ . Les taux de production d'un isotope du néon sont normalisés par le taux de production de cet isotope à l'état de charge 4+

La similitude des distributions en état de charge indique que la diminution de l'efficacité totale, observée pour le  $^{17}\text{Ne}$  (cf. partie II.1.1.3), n'est pas liée au temps de séjour dans la source,  $t_{\text{ion}}$ , pendant l'ionisation de l'état de charge 1+ à l'état de charge n+. Nous en déduisons donc que  $t_{\text{ion}}$  est très inférieur à la demi-vie du  $^{17}\text{Ne}$  ( $T_{1/2} = 109$  ms), ce que nous savions déjà (cf. partie I.4.1).

#### **II.1.1.5 Comparaison des taux expérimentaux de production des faisceaux avec les anciennes mesures**

Les taux expérimentaux de production des faisceaux (cf. tableaux II-1, II-2 et II-3) sont à comparer avec les mesures précédentes effectuées par L. Maunoury et al. [Mau-94]. Les différences entre l'ensemble cible-source utilisé pour les mesures de L. Maunoury et celui que nous avons utilisé ont été exposées au début de la partie II-1. La comparaison des taux de production des faisceaux est présentée dans le tableau II-5.

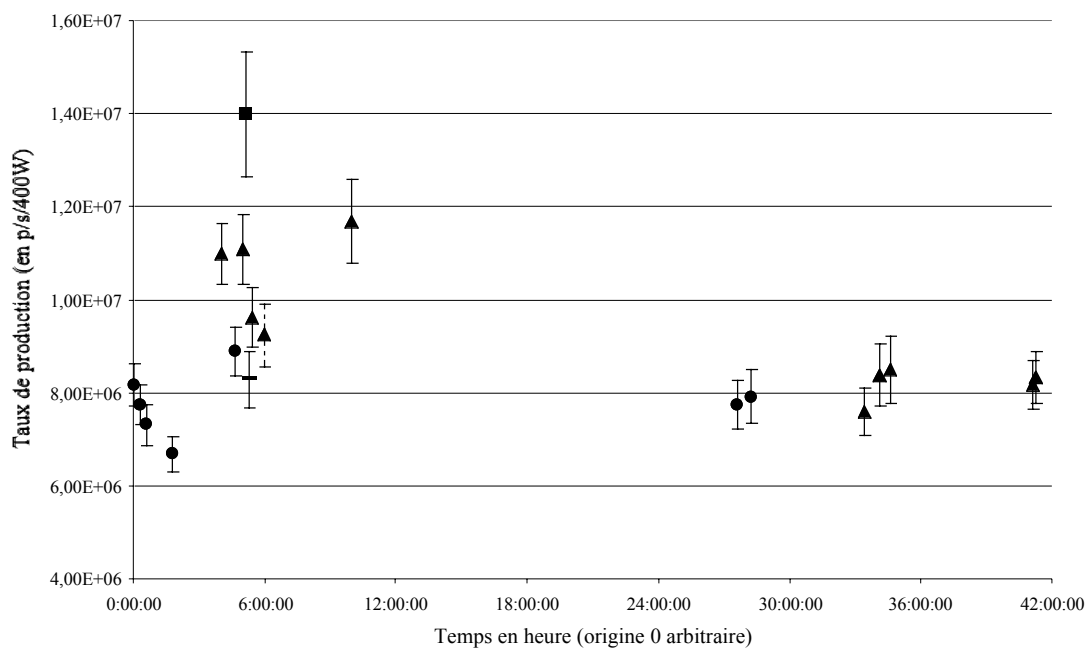
	Cible 4 $\mu\text{m}$ – Source ECR3 [Mau-94]	Cible 1 $\mu\text{m}$ – Source NANOGAN III (mars 2001)
$^{17}\text{Ne}^{5+}$	$3,1(0,2).10^4$ p/s	$8,1(2,8).10^4$ p/s
$^{18}\text{Ne}^{5+}$	$3,1(0,2).10^6$ p/s	$9,8(0,6).10^6$ p/s
$^{19}\text{Ne}^{5+}$	$5,1(0,3).10^7$ p/s	$7,2(0,4).10^7$ p/s

**Tab. II-5** - Comparaison des taux expérimentaux de production des faisceaux avec les anciennes mesures de L. Maunoury et al. [Mau-94]. Les taux de production sont exprimés en particules par seconde et normalisés à 400 W de faisceau primaire

Comme attendus, les taux de production sont plus élevés pour l'ensemble cible-source de SPIRAL (Cible 1  $\mu\text{m}$  – Source NANOGAN III), ceci en raison de l'augmentation de l'efficacité de diffusion dans un grain lorsqu'on diminue le rayon du grain (cf. fin de la partie I.2.1.1). Cela avait déjà été observé pour l' $^{35}\text{Ar}$  [Lan-01].

### II.1.1.6 Stabilité temporelle du taux de production du faisceau de $^{18}\text{Ne}^{4+}$

Le faisceau d'ions radioactifs choisi pour le démarrage de SPIRAL était un faisceau de  $^{18}\text{Ne}^{4+}$ . Un paramètre important, pour SPIRAL, est la fiabilité au cours du temps de l'intensité du faisceau. Nous avons donc mesuré l'évolution temporelle du taux de production du faisceau de  $^{18}\text{Ne}^{4+}$ , ceci sur une durée de 2 jours. Le résultat est représenté dans la figure II-3.



**Fig. II-3** - Evolution temporelle du taux de production du faisceau de  $^{18}\text{Ne}^{4+}$ . Ce taux est normalisé à 400 W de faisceau primaire et est obtenu en associant environ 1500 W de chauffage, par l'axe, de la cible. Les mesures en mode direct sont symbolisées par un rond. Celles en mode indirect, avec déviateur et dérouleur, sont symbolisées par un triangle pour un temps de collection  $T_c$  de 10 ms, un temps d'attente  $T_a$  de 0,6 s et un temps de mesure  $T_r$  de 10 s. Elles sont symbolisées par un carré pour  $T_c = 10$  ms,  $T_a = 4,6$  s et  $T_r = 10$  s et par un trait pour  $T_c = 5$  s,  $T_a = 10,6$  s et  $T_r = 10$  s. Un changement de réglage optique du faisceau primaire est symbolisé par la mesure avec une barre d'erreur en pointillé

Différentes méthodes de mesure ont été testées aux premières heures de mesure :

- la méthode en mode direct : la mesure a lieu en même temps que l'implantation du faisceau de  $^{18}\text{Ne}^{4+}$  sur la zone de mesure.
- la méthode en mode indirect, avec déviateur et dérouleur : le faisceau est implanté sur une bande pendant un temps  $T_c$ , puis le faisceau est dévié, un temps d'attente  $T_a$  est déclenché et la bande est décalée vers la zone de détection où se trouve le détecteur,



enfin le détecteur mesure la radioactivité pendant un temps  $T_r$ . Le cycle  $T_c + T_a + T_r$  est réitéré jusqu'à l'arrêt de la mesure. Différents cas de mesure en mode indirect, avec déviateur et dérouleur, ont été testés :

- $T_c = 10$  ms,  $T_a = 0,6$  s et  $T_r = 10$  s.
- $T_c = 10$  ms,  $T_a = 4,6$  s et  $T_r = 10$  s.
- $T_c = 5$  s,  $T_a = 10,6$  s et  $T_r = 10$  s.

Les fluctuations du taux de production, observées pendant les premières heures de mesure, ne sont pas liées à la méthode de mesure utilisée, car on obtient des résultats similaires pour plusieurs méthodes de mesure différentes. Par contre, elles peuvent être dues à des modifications du réglage de la source et de la ligne, effectuées dans les premières heures de mesure. Après un changement de réglage optique du faisceau primaire, effectué au bout de six heures de mesure, les fluctuations sont beaucoup moins importantes.

#### **II.1.1.7 Prévisions des taux de production des faisceaux de $^{17}\text{Ne}$ , $^{18}\text{Ne}$ et $^{19}\text{Ne}$ pour SPIRAL**

Les taux de production des faisceaux de  $^{17}\text{Ne}$ ,  $^{18}\text{Ne}$  et  $^{19}\text{Ne}$ , déduits pour SPIRAL à partir des mesures effectuées sur SIRA, sont présentés dans le tableau II-6. La puissance de 1,4 kW correspond à une limite temporaire (en cours actuellement [Gan-3]) de la puissance du faisceau primaire utilisé.

faisceau primaire	énergie par nucléon en MeV	puissance (en kW)	faisceau d'ions radioactifs	intensité avant post-accélération (en p/s)	intensité après post-accélération (en p/s)	énergie minimale par nucléon en MeV	énergie maximale par nucléon en MeV
$^{20}\text{Ne}$	95	1,4	$^{17}\text{Ne}^{3+}$	$1,0 \cdot 10^6$	$2,0 \cdot 10^5$	$\sim 2$	8 - 9
			$^{17}\text{Ne}^{4+}$	$1,6 \cdot 10^5$	$3,2 \cdot 10^4$	3 - 4	$\sim 15$
			$^{17}\text{Ne}^{5+}$	$2,8 \cdot 10^5$	$5,7 \cdot 10^4$	6	19,5
			$^{17}\text{Ne}^{6+}$	$1,4 \cdot 10^5$	$2,8 \cdot 10^4$	8 - 9	23 - 24
			$^{18}\text{Ne}^{2+}$	$6,0 \cdot 10^7$	$1,2 \cdot 10^7$	1,7	3,2
			$^{18}\text{Ne}^{4+}$	$3,2 \cdot 10^7$	$6,3 \cdot 10^6$	3,4	12,9
			$^{18}\text{Ne}^{5+}$	$3,4 \cdot 10^7$	$6,9 \cdot 10^6$	5,3	18
			$^{18}\text{Ne}^{7+}$	$5,6 \cdot 10^6$	$1,1 \cdot 10^6$	10,4	24,8
			$^{19}\text{Ne}^{3+}$	$3,3 \cdot 10^8$	$6,6 \cdot 10^7$	1,7	6 - 7
			$^{19}\text{Ne}^{4+}$	$2,7 \cdot 10^8$	$5,5 \cdot 10^7$	$\sim 3$	$\sim 12$
			$^{19}\text{Ne}^{5+}$	$2,5 \cdot 10^8$	$5,0 \cdot 10^7$	4,8	17

**Tab. II-6** - Prévisions des intensités des faisceaux de  $^{17}\text{Ne}$ ,  $^{18}\text{Ne}$  et  $^{19}\text{Ne}$  pour SPIRAL

### **II.1.2 Caractérisation de l'ensemble cible-source de SPIRAL pour la production des faisceaux de néon radioactif**

A partir des mesures de taux de production de faisceaux de néon radioactif effectuées sur SIRa (cf. partie II.1.1), nous avons appliqué la « méthode globale » (cf. partie I.4.3) afin de caractériser l'ensemble cible-source de SPIRAL pour la production des faisceaux de néon radioactif.

#### **II.1.2.1 Efficacité totale du système en régime permanent**

Pour pouvoir appliquer la « méthode globale », il était nécessaire de définir l'efficacité totale du système en régime permanent. Pour l'ensemble cible-source de SPIRAL, dans le cas de la production des faisceaux de néon radioactif, elle est exprimée de la manière suivante :

$$\xi_{\text{totale}} = \left( \frac{6}{\pi^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{k^2 + \frac{\lambda}{\mu_0}} \right) \left( \frac{v_{18} \sqrt{\frac{18}{A}}}{v_{18} \sqrt{\frac{18}{A}} + \lambda} \right) \cdot \text{Cste} \quad (\text{II-1})$$

$$\text{avec} \quad \mu_0 = \frac{\pi^2 D_0 e^{\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right)}}{\rho^2} \quad (\text{II-2})$$

$$\text{et} \quad v_{18} = \frac{1}{\chi D_{\text{vol}}} \sqrt{\frac{3k_B T'}{m_n \cdot 18}} \quad (\text{II-3})$$

où

- le premier terme entre parenthèses représente l'efficacité de diffusion du néon (cf. équation I-4 de la partie I.2.1.1) hors d'un grain de rayon  $\rho$ .  $\lambda$  est la constante de désintégration (égale à  $\ln 2 / T_{1/2}$ ).  $D_0$  et  $E_a$  sont les coefficients d'Arrhenius pour la diffusion du néon dans la cible en carbone. Enfin,  $T$  est la température de la cible.
- le second terme entre parenthèses représente l'efficacité d'effusion du néon (cf. équation I-11 de la partie I.2.1.2). Le terme de collage sur les parois n'est pas présent, car il est négligeable pour des gaz rares.  $v_{18}$  représente l'inverse du temps d'effusion moyen du  $^{18}\text{Ne}$  et  $A$ , le nombre de nucléons de l'isotope considéré (thermalisé à la température  $T'$ ).
- $\text{Cste}$  représente le produit de l'efficacité d'ionisation par l'efficacité de transport. Pour que  $\text{Cste}$  soit réellement constant, les données expérimentales d'efficacité totale utilisées doivent correspondre à des faisceaux de néon de même état de charge. Dans notre cas, nous avons choisi les faisceaux de  $^{17}\text{Ne}^{4+}$ ,  $^{18}\text{Ne}^{4+}$  et  $^{19}\text{Ne}^{4+}$ .

#### **II.1.2.2 Données expérimentales utilisées**

Les données expérimentales d'efficacité totale sont déterminées par le rapport des taux de production des faisceaux mesurés sur les taux de production dans la cible. Pour la

caractérisation de l'ensemble cible-source de SPIRAL pour la production des faisceaux de néon radioactif, les données expérimentales d'efficacité totale établies sont rassemblées dans le tableau II-7.

noyau mesuré	$T_{1/2}$ (en s)	taux de production du faisceau, à l'état de charge 4+, mesuré (en p/s/400W)	taux de production dans la cible (EPAX [Süm-00]) (en p/s/400W)	efficacité totale déduite	incertitude en %
$^{18}\text{Ne}$	1,67	$8,2 \cdot 10^6$	$2,4 \cdot 10^8$	$3,4 \cdot 10^{-2}$	6
		$7,8 \cdot 10^6$		$3,2 \cdot 10^{-2}$	6
		$7,3 \cdot 10^6$		$3,0 \cdot 10^{-2}$	6
		$6,7 \cdot 10^6$		$2,8 \cdot 10^{-2}$	6
		$1,1 \cdot 10^7$		$4,6 \cdot 10^{-2}$	6
		$8,9 \cdot 10^6$		$3,7 \cdot 10^{-2}$	6
		$1,1 \cdot 10^7$		$4,6 \cdot 10^{-2}$	7
		$1,4 \cdot 10^7$		$5,8 \cdot 10^{-2}$	10
		$8,3 \cdot 10^6$		$3,4 \cdot 10^{-2}$	7
		$9,6 \cdot 10^6$		$4,0 \cdot 10^{-2}$	7
		$9,2 \cdot 10^6$		$3,8 \cdot 10^{-2}$	7
		$1,2 \cdot 10^7$		$4,9 \cdot 10^{-2}$	8
		$7,8 \cdot 10^6$		$3,2 \cdot 10^{-2}$	7
		$7,9 \cdot 10^6$		$3,3 \cdot 10^{-2}$	7
		$7,6 \cdot 10^6$		$3,1 \cdot 10^{-2}$	7
$^{18}\text{Ne}$	1,67	$8,4 \cdot 10^6$	$2,4 \cdot 10^8$	$3,5 \cdot 10^{-2}$	8
		$8,5 \cdot 10^6$		$3,5 \cdot 10^{-2}$	9
		$8,2 \cdot 10^6$		$3,4 \cdot 10^{-2}$	6
		$8,3 \cdot 10^6$		$3,5 \cdot 10^{-2}$	7
$^{17}\text{Ne}$	0,109	$4,5 \cdot 10^4$	$1,6 \cdot 10^7$	$2,8 \cdot 10^{-3}$	38
$^{19}\text{Ne}$	17,22	$6,7 \cdot 10^7$	$2,4 \cdot 10^9$	$2,8 \cdot 10^{-2}$	6
$^{19}\text{Ne}$		$8,3 \cdot 10^7$		$3,5 \cdot 10^{-2}$	6
$^{19}\text{Ne}$		$8,3 \cdot 10^7$		$3,5 \cdot 10^{-2}$	6

**Tab. II-7** – Données expérimentales d'efficacité totale utilisées pour la caractérisation de l'ensemble cible-source de SPIRAL pour la production des faisceaux de néon radioactif

### II.1.2.3 Choix et obtention des paramètres

Une première application de la « méthode globale » a été réalisée en choisissant  $\mu_0$ ,  $v_{18}$  et  $C_{ste}$  comme paramètres (cf. partie II.1.2.1) et seulement les efficacités totales du  $^{18}\text{Ne}^{4+}$  comme données expérimentales. Cette première application a été un échec, car les paramètres  $\mu_0$  et  $v_{18}$  n'ont pas convergé (ils restent figés à leur valeur d'injection). La non-convergence

s'explique par le fait qu'une seule valeur de  $\lambda$  (celle du  $^{18}\text{Ne}$ ) était présente dans les données expérimentales. Pour améliorer la convergence de la « méthode globale », il faut disposer de données expérimentales pour plusieurs isotopes.

Une seconde application a été réalisée, toujours en choisissant  $\mu_0$ ,  $v_{18}$  et Cste comme paramètres, mais en considérant les efficacités totales du  $^{17}\text{Ne}^{4+}$ ,  $^{18}\text{Ne}^{4+}$  et  $^{19}\text{Ne}^{4+}$  comme données expérimentales. Cette fois-ci, la méthode a convergé. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau II-8. Malheureusement, la valeur de  $\chi^2_{\text{réduit}}$  est élevée, donc les paramètres obtenus ne sont pas très fiables ( $\chi^2_{\text{réduit}} = 1,0$  est une valeur raisonnable pour la fiabilité). Cela ne remet pas en cause la méthode. Il aurait peut-être fallu disposer de plus de données pour le  $^{17}\text{Ne}^{4+}$  et le  $^{19}\text{Ne}^{4+}$ .

$\mu_0$ (en $\text{s}^{-1}$ )	$v_{18}$ (en $\text{s}^{-1}$ )	Cste	$\chi^2_{\text{réduit}}$
$4,5 \pm 1,4$	$3,4 \pm 1,2$	$0,039 \pm 0,002$	9,0

**Tab. II-8** – Paramètres obtenus à partir de la « méthode globale ». Les écarts-types des paramètres ont été déterminés par la méthode de Monté-Carlo (cf. partie I.4.4.2)

L'inverse du temps d'effusion moyen du néon possédant A nucléons,  $v_A$ , est déterminé à partir de celui du  $^{18}\text{Ne}$ ,  $v_{18}$ , par la relation suivante :

$$v_A = v_{18} \cdot \sqrt{\frac{18}{A}} \quad (\text{II-4})$$

Les efficacités de diffusion, effusion et totale, déduites des paramètres obtenus par la « méthode globale », sont présentées dans le tableau II-9. L'efficacité totale déduite, pour le  $^{17}\text{Ne}^{4+}$ , est plus élevée que celle expérimentale (d'un facteur 3). Les paramètres obtenus surestiment donc l'efficacité de diffusion-effusion pour des noyaux à temps de vie très court (inférieur à 100 ms).

Pendant l'expérience réalisée sur SIRa,  $\mu_0$  et  $v_{17}$  ont été déterminés par F. Landré-Pellemoine [Lan-01] en appliquant la méthode "temps de montée" (cf. partie I.4.2.3) pour le  $^{17}\text{Ne}$ . La comparaison de ses résultats avec ceux de la « méthode globale » est présentée dans le tableau II-10.

Bien que les paramètres obtenus par la méthode "temps de montée" soient plus fiables ( $\chi^2_{\text{réduit}} < 1$ ) que ceux obtenus par la « méthode globale », il a été démontré que la méthode "temps de montée" engendre une ambiguïté [Mau-98] sur la détermination des paramètres  $\mu_0$  et  $v$ . Il est donc difficile de conclure sur la véracité des paramètres obtenus.

noyau ( $T_{1/2}$ en s)	$^{17}\text{Ne}$ (0,109)	$^{18}\text{Ne}$ (1,67)	$^{19}\text{Ne}$ (17,22)
température de la cible (en K) (cf. figure II-1 de la partie II.1.1)	1900 – 2300		
efficacité de diffusion déduite en % ( $\mu_0$ )	59 (4,5 $\pm$ 1,4)	94 (4,5 $\pm$ 1,4)	99 (4,5 $\pm$ 1,4)
efficacité d'effusion déduite en % ( $\nu_A$ )	36 (3,5 $\pm$ 1,2)	89 (3,4 $\pm$ 1,2)	99 (3,3 $\pm$ 1,1)
efficacité de diffusion-effusion en %	21	84	98
efficacité totale déduite en % à l'état de charge 4+	0,81	3,2	3,8
efficacité totale expérimentale en % à l'état de charge 4+ (cf. tableau II-4 de la partie II.1.1.3)	0,28 $\pm$ 0,11	3,7 $\pm$ 0,2	3,3 $\pm$ 0,2

**Tab. II-9** – Efficacités de diffusion, effusion et totale déduites des paramètres obtenus par la « méthode globale »

méthode	« méthode globale »	"temps de montée" [Lan-01]		
température de la cible (en K)	1900 - 2300			
efficacité de diffusion du <sup>17</sup> Ne en % (μ <sub>0</sub> )	59 (4,5 ± 1,4)	85 (22,6)	89 (31,6)	93 (69,8)
efficacité d’effusion du <sup>17</sup> Ne en % (ν <sub>17</sub> )	36 (3,5 ± 1,2)	70 (13,45)	73 (13,65)	69 (13,0)
efficacité de diffusion-effusion en %	21	61	65	65
χ <sup>2</sup> <sub>réduit</sub>	9,0	0,42	0,32	0,36

**Tab. II-10** – Comparaison des paramètres obtenus par la « méthode globale » et par la méthode "temps de montée" [Lan-01]

Une dernière application de la « méthode globale » a été réalisée en choisissant  $\log(D_0)$ ,  $E_a$ ,  $\nu_{18}$  et Cste comme paramètres (cf. partie II.1.2.1) et en considérant les efficacités totales du  $^{17}\text{Ne}^{4+}$ ,  $^{18}\text{Ne}^{4+}$  et  $^{19}\text{Ne}^{4+}$  comme données expérimentales. La méthode a conduit vers les mêmes solutions que celles obtenues par l'application précédente pour les paramètres  $\nu_{18}$  et Cste. Par contre, elle a montré un très grand nombre de solution pour  $\log(D_0)$  et  $E_a$ . Ce comportement était prévisible, car les données expérimentales ont été obtenues pour les mêmes températures de cible. Pour avoir accès aux coefficients d'Arrhenius ( $\log(D_0)$  et  $E_a$ ), il faut disposer de données expérimentales pour des températures diverses de cible.

Les différentes applications de la « méthode globale » ont montré qu'il faut disposer de données expérimentales pour plusieurs isotopes pour que la méthode converge et qu'il faut disposer de données expérimentales pour plusieurs températures de cible pour obtenir une convergence unique des coefficients d'Arrhenius.

### **II.1.3 Intensités des faisceaux de gaz rares radioactifs mesurées sur SPIRAL**

Les prévisions, pour SPIRAL, des intensités des faisceaux d'hélium et d'argon radioactifs ont été déterminées par F. Landré-Pellemoine [Lan-01] et celles des faisceaux de krypton radioactif par L. Maunoury [Mau-98].

Les intensités des faisceaux de gaz rares radioactifs, directement mesurées sur SPIRAL depuis son démarrage le 27 Septembre 2001 [Vil-02], sont disponibles sur le site Internet du GANIL [Gan-3].

## **II.2 Recherche de nouveaux faisceaux d'ions radioactifs pour SPIRAL : les faisceaux d'oxygène, d'azote et de fluor radioactifs**

Les faisceaux d'ions radioactifs, disponibles sur SPIRAL, se limitaient jusqu'à maintenant aux faisceaux de gaz rares radioactifs. L'étape suivante a été de produire des faisceaux d'ions radioactifs autres que ces derniers. Nous avons vu, dans le premier chapitre de cette thèse (cf. fin de la partie I.2.1.2), qu'il est possible d'obtenir des faisceaux d'ions radioactifs, autres que des faisceaux de gaz rares, en utilisant les techniques employées sur SPIRAL basées sur la méthode ISOL (techniques « cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique » et « cible mince – stoppeur solide – source d'ions – séparateur isotopique », cf. partie I.2). Pour cela, il faut procéder de la manière suivante :

- soit éviter toute paroi froide entre la cible et la source d'ions, afin que les éléments radioactifs condensables ne soient pas perdus pendant le processus d'effusion.
- soit transporter l'élément radioactif condensable, de la cible jusqu'à la source d'ions, sous une forme moléculaire volatile à température de salle (température des parois).

### **II.2.1 La production de faisceaux d'éléments radioactifs condensables pour SPIRAL : une étape difficile à franchir**

#### **II.2.1.1 Difficulté d'utilisation d'un tube de transfert chaud avec une source d'ions ECR**

Les ensembles cible-source de SPIRAL, pour la production des faisceaux de gaz rares radioactifs, ont été conçus avec un tube de transfert froid entre la cible et la source d'ions (cf. figure I-13 dans la partie I.3.2.1). Cette conception était volontaire, car l'utilisation d'un tube de transfert froid permet de faire une première purification du faisceau de gaz rare radioactif (cf. partie I.3.2.1) par le processus d'effusion (cf. partie I.2.1.2).

Eviter toute paroi froide entre la cible et la source d'ions n'est pas une action facile :

- la distance qui sépare la cible de la source d'ions est suffisamment importante pour rendre le chauffage des parois, entre la cible et la source, extrêmement délicat.
- raccourcir le tube de transfert n'est pas non plus une solution, car la source d'ions est volontairement éloignée de l'axe du passage du faisceau primaire afin d'éviter la

détérioration des aimants qui contiennent du Bore. Celle-ci pourrait être possible, par absorption de neutrons, suite à l'émission importante de neutrons [Mau-98] liée aux réactions nucléaires produites dans la cible.

- la présence d'un tube à très haute température, à proximité d'une source d'ions de type ECR, risque de provoquer de forts dysfonctionnements de la source d'ions en raison d'une émission trop importante d'électrons [Lec-97-a].

Des faisceaux peuvent être produits de façon plus simple, du point de vue technologique, en utilisant la deuxième solution : le transport sous forme moléculaire volatile à température de salle.

### **II.2.1.2 Transport sous forme moléculaire volatile**

Pour cette solution, les éléments radioactifs condensables d'intérêt sont associés à d'autres éléments pour former un gaz moléculaire, volatile à température de salle (cf. partie I.2.1.2). Cette volatilité à température de salle est importante pour éviter toute condensation sur une paroi froide, comme celles du tube de transfert des ensembles cible-source de SPIRAL, lors du processus d'effusion. Le transport de l'élément radioactif d'intérêt, de la cible jusqu'à la source d'ions, est ainsi réalisé en minimisant les pertes pendant le processus d'effusion.

Etant donnée la faible quantité des éléments radioactifs produits, il n'est pas envisageable, ou du moins très rare, que deux éléments radioactifs s'associent entre eux, en raison de la faible probabilité qu'ils ont de se rencontrer. Pour former une molécule volatile, un élément annexe doit donc être utilisé :

- soit issu d'impuretés implantées dans la cible.
- soit issu de la cible elle-même. Par exemple, une cible de  $B_2O_3$  a été utilisée [Gae-97] à Louvain-la-Neuve pour former les molécules volatiles CO et  $CO_2$  et produire ainsi des faisceaux de  $^{11}C$ .

La première idée que nous avons exploitée, en ce qui concerne la solution du transport sous forme moléculaire volatile, est la possibilité de produire des faisceaux d'oxygène radioactif à partir du carbone issu de la cible de SPIRAL. En effet, le composé CO est volatile à température ambiante (sa température d'ébullition est d'environ 82 K). Le problème a été de savoir à quelle température se forment les molécules CO.

A l'échelle macroscopique, c'est la variation  $\Delta_r G^\circ$  de l'enthalpie libre  $G^\circ$  qui caractérise le profil énergétique d'une réaction chimique (réactifs  $\leftrightarrow$  produits). Les éléments, de la réaction chimique, les plus stables (réactifs ou produits) sont caractérisés par l'enthalpie libre la plus faible. Seulement, la nature des éléments majoritaires (réactifs ou produits) dépend de la température :

- à basse température, les réactions sont lentes et c'est le produit fabriqué le plus vite qui est majoritaire. On dit alors que la réaction est sous contrôle cinétique.

- à haute température, les barrières énergétiques sont aisément franchies (dans les deux sens de la réaction chimique). Le produit majoritaire obtenu est celui le plus stable, appelé produit thermodynamique. On dit alors que la réaction est sous contrôle thermodynamique.

D'après le postulat de Hammond, plus  $\Delta_r G^\circ$  (égal à  $G^\circ(\text{produits}) - G^\circ(\text{réactifs})$ ) est négatif, plus la réaction chimique est rapide. La quantité  $\Delta_r G^\circ$  peut être calculée. Elle est représentée par l'équation suivante :

$$\Delta_r G^\circ = \Delta_r H^\circ - T\Delta_r S^\circ \quad (\text{II-5})$$

où

- $\Delta_r H^\circ$  est l'enthalpie standard de réaction.
- $\Delta_r S^\circ$ , la variation d'entropie liée à la réaction.

En ce qui concerne la réaction qui nous intéresse,  $\text{C} + \text{O} \leftrightarrow \text{CO}$ ,  $\Delta_r H^\circ$  est négatif. De plus, l'entropie augmente au cours de la réaction. En effet, au cours de celle-ci, la quantité de gaz augmente et cela se caractérise, en thermodynamique chimique, par une augmentation de l'entropie. Par conséquent, quelle que soit la température,  $\Delta_r G^\circ$  est négatif, donc, CO est le produit thermodynamique (produit le plus stable) de la réaction.

Malheureusement, on est dans un cas où la réaction est très, très lente à basse température. D'après le postulat de Hammond, la rapidité de la réaction peut être augmentée en diminuant la valeur de  $\Delta_r G^\circ$ . Or, pour notre réaction chimique, plus la température est élevée, plus  $\Delta_r G^\circ$  est négatif et donc, plus la réaction est rapide. Nous pouvons donc espérer que la réaction, entre le carbone et l'oxygène, tende suffisamment rapidement vers le produit thermodynamique CO aux températures de cible pour lesquelles nous travaillons avec les ensembles cible-source de SPIRAL. De cette rapidité de réaction dépend l'efficacité de la méthode, puisque CO, contrairement à O, est volatile à basse température.

Notre hypothèse est donc, qu'avec les ensembles cible-source de SPIRAL tels qu'ils sont actuellement, il est possible de produire facilement des faisceaux d'oxygène radioactif en raison de la formation (à haute température) d'un gaz porteur (CO), volatile à température ambiante, par association avec un atome de carbone de la cible.

Le but, maintenant, est de vérifier expérimentalement cette hypothèse, car ses conséquences sont extrêmement importantes. En effet, cela voudrait dire que SPIRAL est, dès aujourd'hui, une installation qui permet, non seulement de produire des faisceaux d'hélium, de néon, d'argon et de krypton radioactifs, mais aussi des faisceaux d'oxygène radioactif. Le but est également de quantifier l'efficacité d'association entre l'oxygène radioactif produit et un atome de carbone, aux températures de cible pour lesquelles nous travaillons. De cette efficacité d'association dépend l'intensité du faisceau d'oxygène radioactif obtenu.



### **II.2.2 Mise en place d'une expérience sur SIRa**

Pour vérifier notre hypothèse, nous allons, bien-sûr, faire le test en cherchant à produire un faisceau d'oxygène radioactif. Pour augmenter la précision des mesures, nous allons chercher à produire le maximum d'oxygène radioactif possible. Donc, d'après ce que nous avons vu précédemment (cf. amélioration des taux de production, dans la partie I.3.1), nous avons choisi de prendre un faisceau primaire d' $^{16}\text{O}$  de 95.A MeV pour optimiser la production des noyaux radioactifs d'oxygène riches en protons. Le choix d'un tel faisceau permet également de mesurer l'efficacité du système pour la production des faisceaux d'azote radioactifs. Cependant, contrairement au cas de l'oxygène, il n'existe pas, avec un seul atome d'azote radioactif, d'association avec le carbone conduisant à la formation d'une molécule volatile à basse température (température des parois froides). L'efficacité du système doit donc être, à priori, beaucoup plus faible pour la production des faisceaux d'azote radioactifs. Nous vérifierons également cette hypothèse à partir de l'expérience.

L'ensemble cible-source choisi pour l'expérience est celui dédié à la production des faisceaux de néon, d'argon et de krypton radioactifs, car il est le mieux adapté à notre cas. Il faut maintenant s'assurer que le faisceau primaire est bien arrêté dans la cible qui a été conçue pour arrêter des faisceaux primaires de néon, d'argon et de krypton. Le parcours d'un faisceau d' $^{16}\text{O}$  de 95.A MeV est de  $1,99 \text{ g/cm}^2$  dans du carbone. Or, le carbone utilisé pour la cible a une densité de  $1,78 \text{ g/cm}^3$ . Le parcours de l' $^{16}\text{O}$  dans la cible est donc de 11,2 mm. La cible possède 19 lamelles, de 0,5 mm chacune, qui ne font pas partie du cône de la cible (cf. partie I.3.2.1). Il manque donc 1,7 mm de cible pour arrêter le faisceau primaire d' $^{16}\text{O}$  dans la partie non conique. Le faisceau arrive par la partie conique, possédant un demi-angle au sommet de 10 degrés et des lamelles espacées de 0,8 mm. La cible possède un diamètre de 19 mm dans la partie non conique. Il faut donc que le faisceau primaire d' $^{16}\text{O}$  soit implanté dans un diamètre de cible de 17,2 mm maximum pour que son parcours soit entièrement inclus dans la cible. Comme ce diamètre reste très proche du diamètre initial de la cible, cette dernière convient pour une implantation d'un faisceau d' $^{16}\text{O}$  de 95.A MeV et donc, pour effectuer nos mesures.

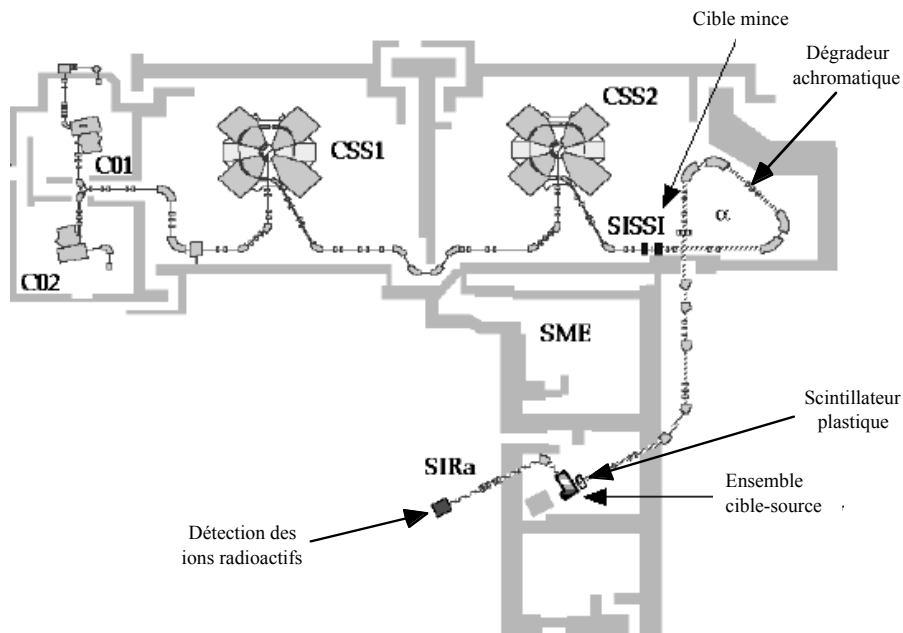
L'efficacité de l'ensemble cible-source pour la production d'un faisceau d'oxygène radioactif est la première quantité à obtenir, afin de savoir s'il est possible de produire facilement des faisceaux d'oxygène radioactifs à partir de SPIRAL, comme nous l'avons supposé. Pour effectuer ces mesures d'efficacité, l'ensemble cible-source a été installé sur SIRa. La méthode basée sur une implantation des noyaux radioactifs dans la cible [Lec-97-b] a été utilisée pour obtenir l'efficacité totale du système. Un schéma du dispositif expérimental de la méthode est présenté dans la figure II-4.

Le faisceau d'ions radioactifs est produit par fragmentation du faisceau primaire dans une cible mince à partir de l'installation SSSI (cf. fin de la partie I.3.1). Un scintillateur plastique, placé juste avant l'implantation dans la cible de l'ensemble cible-source, permet d'identifier (par la méthode du temps de vol) et de quantifier le nombre d'ions radioactifs  $\tau_{\text{implanté}}$  (qui nous intéressent) implantés, par seconde, dans la cible. Enfin, la mise en place d'une détection appropriée permet également de quantifier le nombre d'ions radioactifs  $\tau_{\text{disponible}}$  (qui nous intéressent) parvenant, par seconde, jusqu'à la zone de détection de SIRa.

Le rapport des deux taux donne la valeur de l'efficacité totale du système, en régime permanent, donnée par l'équation I-16 (cf. partie I.4.1), soit :

$$\frac{\tau_{\text{disponible}}}{\tau_{\text{implanté}}} = \xi_{\text{totale}} = \xi_{\text{diff}} \cdot \xi_{\text{eff}} \cdot \xi_{\text{ion}} \cdot \xi_{\text{tran}} \quad (\text{II-6})$$

Pour obtenir la meilleure précision possible sur l'efficacité totale du système, le choix de l'isotope d'oxygène radioactif, utilisé pour effectuer la mesure, doit être le plus judicieux possible. C'est pourquoi, nous avons préféré choisir l' $^{14}\text{O}$  plutôt que l' $^{15}\text{O}$ . En effet, la décroissance radioactive de l' $^{14}\text{O}$  est parfaitement identifiée, en utilisant un détecteur Germanium, par la raie  $\gamma$  caractéristique à 2312,6 keV dont le rapport d'embranchement est supérieur à 99 %, alors que la décroissance radioactive de l' $^{15}\text{O}$  ne s'accompagne pas d'un rayonnement  $\gamma$  caractéristique, puisque seuls les  $\gamma$  de 511 keV d'annihilation du positron, issu de la décroissance  $\beta^+$ , sont émis et doivent être extraits du bruit de fond à 511 keV pour parfaitement quantifier l' $^{15}\text{O}$ .



**Fig. II-4** - Dispositif expérimental de la méthode de mesure de l'efficacité totale du système par implantation d'un faisceau d'ions radioactifs dans la cible

Le dégradeur achromatique (cf. figure II-4) permet de purifier le faisceau secondaire créé à partir de SISSI. Le choix établi dans l'épaisseur de la cible mince de SISSI, associé avec l'épaisseur choisie du dégradeur achromatique, permet d'obtenir un faisceau secondaire, avant implantation dans la cible de l'ensemble cible-source de SIRa, constitué de  $^{14}\text{O}$ , de  $^{13}\text{N}$  et de  $^{12}\text{C}$ . L'efficacité totale du système pourra donc également être mesurée pour l'azote à partir de l'isotope radioactif de  $^{13}\text{N}$ . Comme l' $^{13}\text{N}$  est émetteur  $\beta^+$  et décroît directement vers le niveau fondamental du  $^{13}\text{C}$  (pas de  $\gamma$  caractéristique), il sera quantifié à partir du rayonnement  $\gamma$  d'énergie 511 keV après extraction du bruit de fond. L'énergie du faisceau de  $^{14}\text{O}$ , avant implantation dans la cible, est d'environ 54,4 MeV. Le parcours du faisceau de  $^{14}\text{O}$  dans la

cible est donc d'environ 3,6 mm (au lieu d'un parcours compris entre 9,8 mm et 11,2 mm pour une production dans la cible à partir du faisceau primaire d' $^{16}\text{O}$ ). La partie non-conique de la cible est donc largement suffisante pour arrêter le faisceau d' $^{14}\text{O}$ . C'est également le cas pour le faisceau d' $^{13}\text{N}$ , puisque son énergie, avant implantation, est d'environ 48.A MeV et donc son parcours dans la cible d'environ 3,5 mm (au lieu d'un parcours compris entre 11,2 mm et 11,9 mm pour une production dans la cible à partir du faisceau primaire d' $^{16}\text{O}$ ).

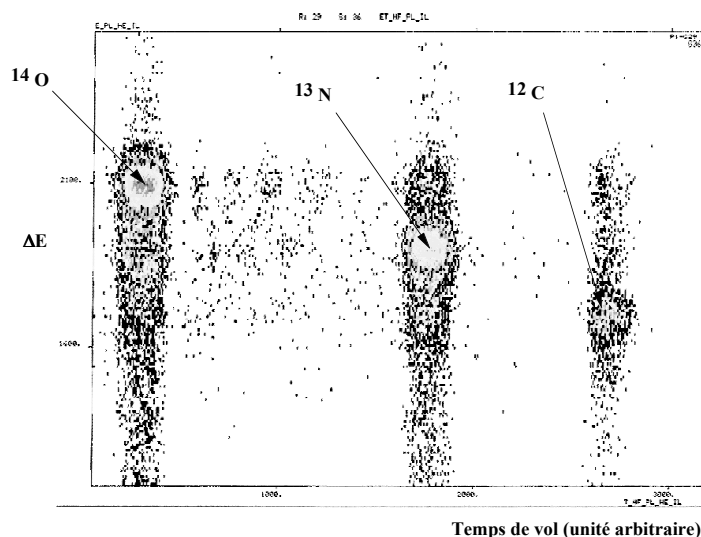
L'efficacité totale du système, pour l' $^{14}\text{O}$ , sera mesurée en fonction de la température de la cible afin de déterminer l'évolution du comportement de diffusion-effusion de cet élément dans une matrice de carbone.

Enfin, pour prédire les taux de production des faisceaux d'ions radioactifs d'oxygène et d'azote sur SPIRAL, nous terminerons cette expérience par une mesure des taux de production de l' $^{15}\text{O}$ , de l' $^{14}\text{O}$  et de l' $^{13}\text{N}$  à partir d'un faisceau primaire d' $^{16}\text{O}$  de 95.A MeV.

L'expérience a eu lieu du 17 Novembre au 20 Novembre 2000.

### **II.2.3 Mesures d'efficacité pour l' $^{14}\text{O}$ et l' $^{13}\text{N}$**

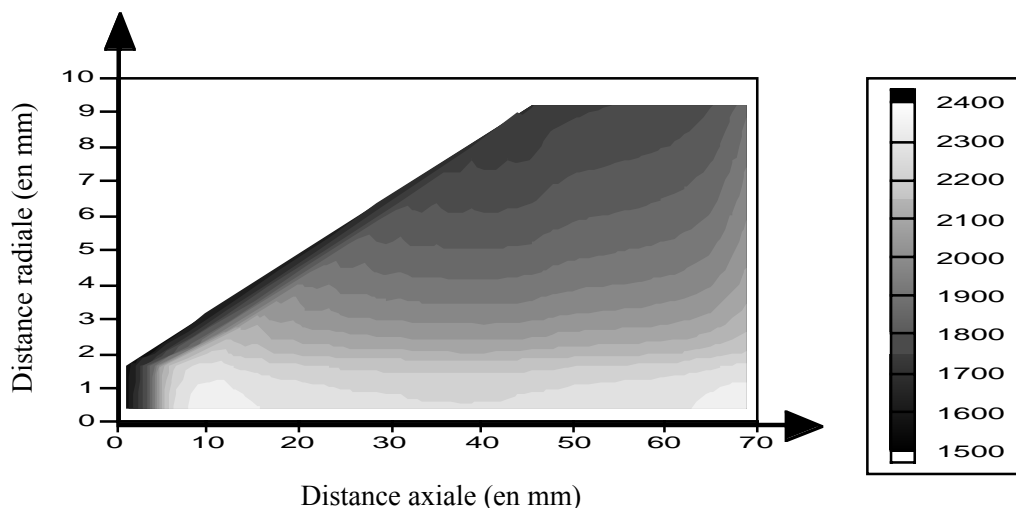
Le spectre d'identification obtenu à partir du scintillateur plastique, pour le faisceau secondaire créé à partir de SISSI, est représenté dans la figure II-5. Le faisceau secondaire a bien été purifié par le dégradeur achromatique, puisque seuls les faisceaux d' $^{14}\text{O}$ , d' $^{13}\text{N}$  et de  $^{12}\text{C}$  sont présents dans le faisceau secondaire.



**Fig. II-5** – Spectre d'identification obtenu, pour le faisceau secondaire créé à partir de SISSI, après purification par le dégradeur achromatique. L'abscisse représente le temps de vol et l'ordonnée, l'énergie déposée dans le scintillateur plastique placé juste avant la cible épaisse de l'ensemble cible-source

Le faisceau secondaire est trop peu intense pour chauffer correctement la cible dans le but de faciliter la diffusion des éléments radioactifs (cf. partie I.2.1.1). La cible a donc été chauffée, par effet Joule (cf. possibilité de chauffage de la cible, dans la partie I.3.2.1), en

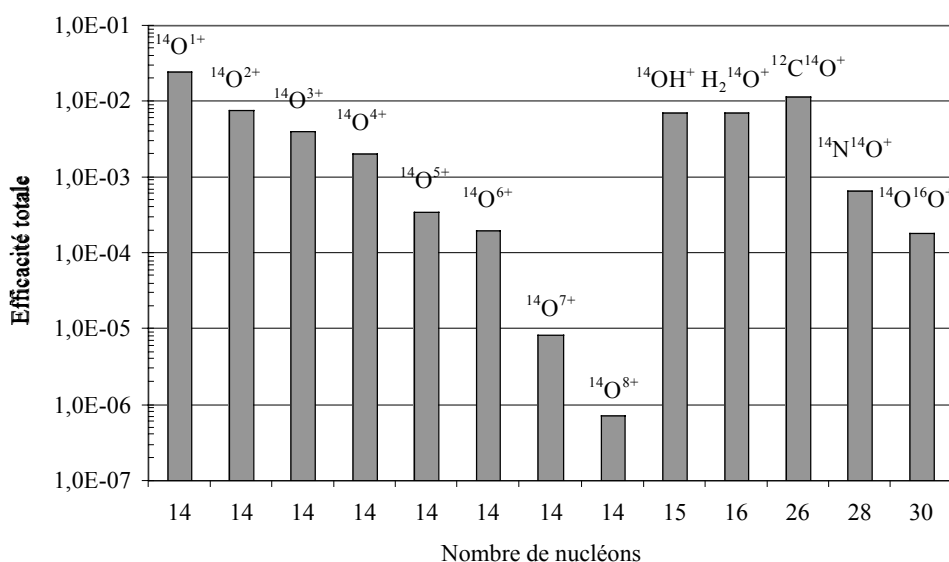
appliquant une puissance à l'axe de 1900 W. La distribution en température, obtenue dans la cible, est représentée dans la figure II-6. Elle est plutôt inhomogène, puisque la température varie de 1700 K à 2300 K suivant la partie de cible concernée.



**Fig. II-6** - Distribution en température de la cible en utilisant une puissance de chauffage par l'axe de 1900 W. Les températures indiquées sont en Kelvin

### II.2.3.1 Efficacité pour l' $^{14}\text{O}$

L'efficacité totale du système a été mesurée, suivant la méthode exposée dans la partie II.2.2 (cf. équation II-6), pour tous les composés contenant un noyau d' $^{14}\text{O}$ . Le résultat est reporté dans la figure II-7. Ces mêmes mesures sont regroupées dans le tableau II-11.



**Fig. II-7** - Efficacités totales moyennes mesurées, sur le banc de tests SIRa, pour chaque composé contenant un atome d'  $^{14}\text{O}$  et pour une température de cible comprise entre 1700 K et 2300 K.  $^{12}\text{C}^{14}\text{O}^{16}\text{O}^+$  n'est pas représenté parce que sa quantité est négligeable devant celle de  $^{12}\text{C}^{14}\text{O}^+$

ion mesuré	efficacité totale mesurée	incertitude globale (en %)
$^{14}\text{O}^+$	$2,5 \cdot 10^{-2}$	6
$^{14}\text{O}^{2+}$	$7,7 \cdot 10^{-3}$	6
$^{14}\text{O}^{3+}$	$4,0 \cdot 10^{-3}$	6
$^{14}\text{O}^{4+}$	$2,1 \cdot 10^{-3}$	8
$^{14}\text{O}^{5+}$	$3,4 \cdot 10^{-4}$	19
$^{14}\text{O}^{6+}$	$2,0 \cdot 10^{-4}$	9
$^{14}\text{O}^{7+}$	$8,3 \cdot 10^{-6}$	10
$^{14}\text{O}^{8+}$	$7,1 \cdot 10^{-7}$	11
$^{12}\text{C}^{14}\text{O}^+$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	5
$^{14}\text{OH}^+$	$7,1 \cdot 10^{-3}$	8
$\text{H}_2^{14}\text{O}^+$	$7,2 \cdot 10^{-3}$	12
$^{14}\text{N}^{14}\text{O}^+$	$6,7 \cdot 10^{-4}$	8
$^{14}\text{O}^{16}\text{O}^+$	$1,8 \cdot 10^{-4}$	12

**Tab. II-11** – Efficacités totales moyennes mesurées, sur le banc de tests SIRa, pour chaque composé contenant un atome d' $^{14}\text{O}$  et pour une température de cible comprise entre 1700 K et 2300 K

De nombreuses molécules, comme, par exemple,  $^{14}\text{OH}$ ,  $\text{H}_2^{14}\text{O}$  ou encore  $^{14}\text{O}^{16}\text{O}$ , ont été sélectionnées par le séparateur SIRa et quantifiées par la mesure de la radioactivité de l' $^{14}\text{O}$ . Nous pensons que ces molécules ont été formées, mise à part une partie de  $^{12}\text{C}^{14}\text{O}$ , dans la source d'ions ECR. En effet, d'après notre hypothèse (cf. partie II.2.1.2), l'oxygène radioactif peut parvenir efficacement jusqu'à la source d'ions s'il s'associe avec du carbone de la cible pour former la molécule  $^{12}\text{CO}$ , parce que la molécule  $^{12}\text{CO}$  est volatile à température ambiante et peut donc effuser beaucoup plus rapidement que l'élément O (réfractaire à température ambiante). Or la source d'ions utilisée favorise la formation d'ions multichargés, donc, une partie des molécules  $^{12}\text{CO}$  est dissociée en  $^{12}\text{C}$  et O dans la source. Cela justifie la quantité importante d' $^{14}\text{O}$  seul observée. Une partie de l' $^{14}\text{O}$  s'associe, dans la source d'ions, avec les impuretés (H,  $^{16}\text{O}$ ,  $^{14}\text{N}$ ), déjà observées avant l'expérience, présentes dans la source.

L'efficacité totale du système, pour l' $^{14}\text{O}$  et pour une température de cible comprise entre 1700 K et 2300 K, a été déduite en sommant les efficacités totales moyennes mesurées pour tous les états de charge de l' $^{14}\text{O}$  et pour tous les composés moléculaires contenant de l' $^{14}\text{O}$  : l'efficacité totale, pour l' $^{14}\text{O}$ , est de  $6,5 \% \pm 0,4 \%$ .

D'un point de vue théorique, l'efficacité totale du système dépend de l'efficacité de transformation de O en CO dans la cible. L'efficacité totale liée à la quantité d'oxygène radioactif ayant atteint la source d'ions sous une autre forme que  $^{12}\text{CO}$  est considérée comme négligeable (le temps de collage, sur les parois, de l'oxygène seul est trop élevé). Par conséquent, l'efficacité totale du système (cf. équation II-6 dans la partie II.2.2), pour l' $^{14}\text{O}$ , peut être exprimée de la manière suivante :

$$\xi_{\text{totale}} \approx \xi_{\text{O} \rightarrow \text{CO}} \cdot \xi_{\text{diff}} \cdot \xi_{\text{eff}} \cdot \xi_{\text{ion}} \cdot \xi_{\text{tran}} \quad (\text{II-7})$$

où  $\xi_{O \rightarrow CO}$  représente l'efficacité de transformation de O en CO dans la cible. L'efficacité de l'ensemble cible-source,  $\xi_{\text{cible-source}}$ , pour l' $^{14}\text{O}$  se déduit de l'efficacité totale du système, pour l' $^{14}\text{O}$ , par la relation suivante :

$$\xi_{\text{cible-source}} = \frac{\xi_{\text{totale}}}{\xi_{\text{tran}}} \approx \xi_{O \rightarrow CO} \cdot \xi_{\text{diff}} \cdot \xi_{\text{eff}} \cdot \xi_{\text{ion}} \quad (\text{II-8})$$

L'efficacité de transport a été mesurée pendant l'expérience. Elle a été estimée à 53 %  $\pm$  5 %. L'efficacité de l'ensemble cible-source, pour l' $^{14}\text{O}$  et pour une température de cible comprise entre 1700 K et 2300 K, est donc de 12 %  $\pm$  1 %.

Cette efficacité est à comparer avec celle des gaz rares. Pour ces derniers, l'efficacité d'ionisation est proche de 100 %. Comme nous l'avons vu pour le cas du néon (cf. tableau II-9 dans la partie II.1.2.3), l'efficacité de diffusion-effusion des gaz rares est très proche de 100 % pour des valeurs de temps de vie aussi importantes (70,6 s pour l' $^{14}\text{O}$ ) et pour des températures de cible de cet ordre. Les pertes sont donc seulement d'un facteur 8 pour l' $^{14}\text{O}$ , au niveau de l'efficacité de l'ensemble cible-source, par comparaison avec les gaz rares. C'est plutôt un bon résultat, car l'oxygène est un élément condensable. Le tout, maintenant, est de savoir à quel niveau se trouvent les pertes. Nous diagnostiquerons cela au moment où nous chercherons à connaître l'efficacité de transformation de O en CO. Mais, avant cela, nous allons comparer l'efficacité de notre ensemble cible-source, pour l'oxygène, avec celles mesurées pour d'autres ensembles cible-source dans d'autres laboratoires.

### **II.2.3.2 Mesures d'efficacité d'ensembles cible-source, pour l'oxygène, dans d'autres laboratoires**

Les mesures effectuées dans d'autres laboratoires ont été regroupées par U. Köster dans une publication récente [Kös-02]. Nous allons les énumérer individuellement et les comparer avec nos propres résultats :

- au séparateur LISOL à Louvain-la-Neuve, une efficacité cible-source de 0,4 % [Gae-01] a été obtenue, pour un faisceau de  $^{12}\text{C}^{14}\text{O}^+$ , en utilisant une cible en graphite associée à une source FEBIAD (cf. les sources d'ions à plasma, dans la partie I.2.1.3).
- au CRC à Louvain-la-Neuve, une efficacité cible-source de 1,2 % [Loi-00] a été obtenue, pour un faisceau d' $^{15}\text{O}^{2+}$ , en utilisant une cible liquide de LiF, contenue dans une matrice en graphite, et une source ECRIS (cf. les sources d'ions à plasma, dans la partie I.2.1.3).
- au LBL, une efficacité cible-source de 2,0 % [Bur-01] a été mesurée, pour un faisceau d' $^{14}\text{O}^+$ , en utilisant une cible en carbone et une source ECRIS.

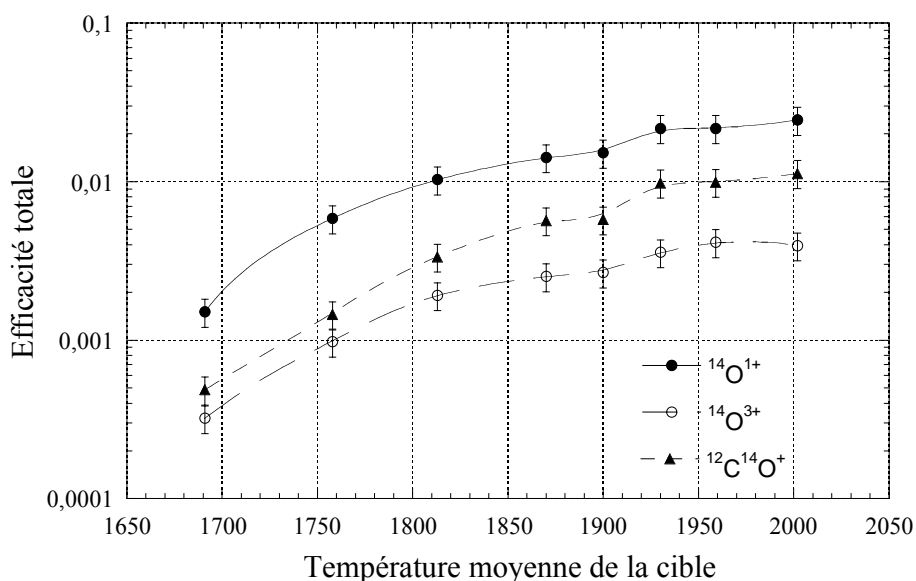
En comparant ces résultats avec ceux du tableau II-11, nous pouvons constater que les résultats obtenus sur SIRa sont très compétitifs. En effet, nous avons obtenu une efficacité cible-source de 2,1 % pour un faisceau de  $^{12}\text{C}^{14}\text{O}^+$ , de 1,5 % pour un faisceau d' $^{14}\text{O}^{2+}$  et de 4,6 % pour un faisceau d' $^{14}\text{O}^+$ .

D'après ces différentes comparaisons, l'association d'une cible en carbone avec une source ECRIS semble être la meilleure combinaison pour obtenir les efficacités cible-source, pour l'oxygène, les plus élevées.

Le but de cette expérience était de vérifier si on pouvait produire efficacement des faisceaux d'oxygène radioactif au GANIL. C'est le cas pour les isotopes radioactifs d'oxygène à temps de vie long, puisque nous avons obtenu une efficacité de l'ensemble cible-source de  $12 \% \pm 1 \%$ , pour  $^{14}\text{O}$  et pour une température de cible comprise entre 1700 K et 2300 K (cf. partie II.2.3.1). Quantifier l'efficacité de transformation de O en CO permettra de savoir à quel point notre hypothèse de base est fondée (l'oxygène parvient efficacement jusqu'à la source d'ions sous la forme moléculaire volatile CO). Pour cela, nous allons d'abord nous intéresser à l'efficacité de diffusion-effusion.

### II.2.3.3 Efficacité de diffusion-effusion pour $^{14}\text{O}$

L'efficacité d'ionisation et l'efficacité de transport sont indépendantes de la température de la cible. L'évolution de l'efficacité totale du système, pour  $^{14}\text{O}^+$ , pour  $^{14}\text{O}^{3+}$  et pour le  $^{12}\text{C}^{14}\text{O}^+$ , a été mesurée en fonction de la température moyenne de la cible, afin de connaître l'évolution du comportement de diffusion-effusion pour  $^{14}\text{O}$ . Le résultat est représenté dans la figure II-8.



**Fig. II-8** - Efficacité totale mesurée, sur le banc de tests SIRa, pour  $^{14}\text{O}^+$ ,  $^{14}\text{O}^{3+}$  et le  $^{12}\text{C}^{14}\text{O}^+$ , en fonction de la température moyenne de la cible (en Kelvin). Le faisceau d' $^{14}\text{O}$  était produit avec SISSI et implanté directement dans la cible

Le maximum de l'efficacité de diffusion-effusion (zone de plateau) a été atteint pour la température moyenne de cible à laquelle les mesures d'efficacité totale, pour  $^{14}\text{O}$ , ont été effectuées (la température moyenne de 2000 K correspond à la puissance de chauffage par l'axe, de la cible, de 1900 W à laquelle ont été effectuées toutes les mesures d'efficacité totale

pour l' $^{14}\text{O}$ ). On en déduit également que le comportement de diffusion-effusion, en fonction de la température de la cible, est similaire à celui des gaz rares. Cependant, il est délicat d'extraire des coefficients de ces courbes (cf. coefficients d'Arrhenius dans la partie I.2.1.1), car nous ne savons pas comment varie quantitativement, en fonction de la température, l'efficacité de transformation de O en CO et nous ne savons pas non plus à quel moment de la diffusion cette transformation intervient (est-ce en surface de la cible ?).

D'après la théorie de la diffusion (cf. partie I.2.1.1), pour une cible constituée de grains dont la taille ne dépasse pas 1  $\mu\text{m}$  et pour une demi-vie de l'ordre de 70 s, l'efficacité de diffusion atteint une valeur de 100 % au plateau, même pour un coefficient de diffusion  $D_0$  très faible, de l'ordre de  $10^{-9} \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$  (la plus faible valeur mesurée pour  $D_0$  est de  $1,6.10^{-8} \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$  [Kir-92] correspondant à la diffusion du  $^{209}\text{Bi}$  dans du carbone PT-5890 [Car-95]). L'efficacité de diffusion-effusion, pour l' $^{14}\text{O}$ , a atteint la zone de plateau pour une température moyenne de cible de 2000 K (cf. figure II-8). Nous pouvons donc conclure que l'efficacité de diffusion, pour l' $^{14}\text{O}$ , a atteint sa valeur de plateau, soit 100 %, pour une température moyenne de cible de 2000 K.

Bien qu'un comportement d'effusion proche de celui des gaz rares (cf. partie I.2.1.2) ait été observé pour CO [Wel-96] (un temps de collage moyen, sur du quartz, de 8 ms a été mesuré pour une température d'environ 600 K), nous ne pouvons pas conclure sur la valeur atteinte par l'efficacité d'effusion pour le  $^{12}\text{C}^{14}\text{O}$ . En effet, nous ne connaissons pas les caractéristiques de collage sur du carbone (cible, etc.) et sur de l'aluminium (tube de transfert, etc.).

Finalement, on peut déduire (cf. équation II-8 dans la partie II.2.3.1) que, pour l' $^{14}\text{O}$  et pour une température de cible comprise entre 1700 K et 2300 K, le produit de l'efficacité de transformation de O en CO, par l'efficacité d'effusion et par l'efficacité d'ionisation est égal à  $12 \% \pm 1 \%$ .

D'après notre hypothèse, comme l'oxygène parvient efficacement jusqu'à la source d'ions uniquement sous la forme volatile CO, l'efficacité d'ionisation que nous devons mesurer est l'efficacité d'ionisation de l'oxygène issu du monoxyde de carbone. Il faut donc injecter du CO stable par une fuite calibrée. Cependant, il ne faut pas confondre le carbone issu de la cible avec celui issu de la fuite calibrée, ni confondre l'oxygène issu du bruit de fond avec celui issu de la fuite calibrée. Cette mesure nécessite donc des conditions de travail les plus propres possibles. C'est pourquoi nous avons effectué ces mesures hors-ligne (pas d'implantation de faisceau). Nous avons utilisé une fuite calibrée de  $^{13}\text{C}^{16}\text{O}$  pour effectuer ces mesures. Cependant, nous n'avons pas trouvé, dans le commerce, de système de fuite calibrée permettant de connaître le débit de CO injecté. En effet, les systèmes, de fuite calibrée, habituellement utilisés réagissent chimiquement avec des composés tels que CO. Nous avons donc créé une « fuite calibrée » via une micro-vanne de gaz et en utilisant un mélange d'argon stable et de monoxyde de carbone. La pression partielle des deux constituants étant déterminée et sachant que l'efficacité d'ionisation de l'argon est d'environ 100%, nous avons pu déduire le débit de CO de la « fuite calibrée » ainsi fabriquée.



La fuite calibrée est injectée aux alentours de la cible. Nous avons effectué les mesures d'efficacité d'ionisation pour plusieurs températures de cible, allant de la température de la salle (puissance de chauffage, par l'axe, nulle) jusqu'à la température moyenne de 2000 K.

Le premier résultat est que les efficacités d'ionisation mesurées, pour le carbone et l'oxygène issus de la fuite calibrée, sont indépendantes de la température de la cible. Cela prouve bien la stabilité de la molécule CO quelle que soit la température de la cible (CO est le produit thermodynamique de la réaction d'association de l'oxygène avec le carbone). Les mesures d'efficacité d'ionisation de l'oxygène issu de CO sont trop imprécises en raison du bruit de fond important en oxygène. L'efficacité d'ionisation de l'oxygène issu de CO a été supposée égale à l'efficacité d'ionisation du carbone issu de CO (en considérant la barre d'erreur des mesures effectuées pour l'oxygène, c'était le cas). L'efficacité d'ionisation obtenue est de  $29 \% \pm 9 \%$ .

L'efficacité d'ionisation du composé moléculaire volatile CO est donc trois fois plus faible que celle des gaz rares, environ égale à 100 %. La source NANOGAN III ne parvient peut-être pas à ioniser l'intégralité du gaz CO qu'on lui injecte. Une autre éventualité est qu'une partie des ions, issus de l'ionisation de CO dans la source d'ions, se neutralise dans la source et soit perdue par collage en heurtant une paroi. Il serait intéressant de chercher à améliorer l'efficacité d'ionisation de CO, car on pourrait gagner jusqu'à un facteur 3 sur les intensités des faisceaux d'oxygène radioactif disponibles.

Finalement, on peut conclure que, pour l' $^{14}\text{O}$  et pour une température de cible comprise entre 1700 K et 2300 K, le produit de l'efficacité de transformation de O en CO dans la cible par l'efficacité d'effusion est de  $42 \% \pm 13 \%$ .

Ce résultat confirme, quantitativement, l'hypothèse de départ suivant laquelle on peut produire efficacement des faisceaux d'oxygène radioactif grâce à la transformation de O en CO dans la cible. D'après ce que nous avons vu précédemment (cf. enthalpie libre de la réaction, dans la partie II.2.1.2), il faudrait encore augmenter la température de la cible pour accélérer la réaction et espérer pouvoir augmenter l'efficacité de transformation de O en CO. Cependant, nous ne pouvons pas augmenter beaucoup plus la température de la cible sous peine de rendre trop élevé le taux d'évaporation de la cible (cf. température limite d'environ 2500 K, dans la partie I.3.2.1). Par contre, nous pouvons essayer de rendre la température de la cible plus homogène afin de pouvoir augmenter la température moyenne de la cible.

Il serait également intéressant, dans l'avenir, de mesurer l'efficacité totale du système pour un isotope d'oxygène à durée de vie plus courte, afin de voir l'évolution du comportement de diffusion-effusion en fonction de la durée de vie de l'isotope concerné. Des mesures pourraient être effectuées, par exemple, avec l' $^{21}\text{O}$ , dont la durée de vie est de 3,4 s et qui est facilement identifiable par le rayonnement  $\gamma$  caractéristique d'énergie 1730,3 keV (rapport d'embranchement de 45,6 %) émis lors de sa décroissance radioactive.

La conclusion, déduite des mesures expérimentales effectuées sur SIRa, est qu'il est possible de fournir, aujourd'hui, des faisceaux intenses d'oxygène radioactifs en utilisant un transport moléculaire entre la cible et la source [Gib-02].

### II.2.3.4 Efficacité pour l'<sup>13</sup>N

Nous avons également effectué des mesures d'efficacité pour l'<sup>13</sup>N ( $T_{1/2} = 597,9$  s), en utilisant le faisceau secondaire d'<sup>13</sup>N obtenu à partir de l'installation SSSI. Nous avons donc utilisé la même méthode de mesure d'efficacité que pour l'<sup>14</sup>O (cf. partie II.2.2).

Les mesures effectuées pour l'<sup>13</sup>N sont beaucoup moins précises que celles effectuées pour l'<sup>14</sup>O. La raison principale à cela est que l'<sup>13</sup>N est un émetteur  $\beta^+$  uniquement vers le niveau fondamental du <sup>13</sup>C (pas de  $\gamma$  caractéristique). Il a été quantifié à partir du rayonnement  $\gamma$  d'énergie 511 keV, après extraction du bruit de fond. L'efficacité cible-source est obtenue directement (cf. équation II-6 dans la partie II.2.2) en corrigeant l'efficacité totale par l'efficacité de transport. Les différentes valeurs d'efficacité cible-source mesurées, après correction par l'efficacité de transport et pour une température de cible comprise entre 1700 K et 2300 K (soit une puissance de chauffage par l'axe de 1900 W), sont représentées dans le tableau II-12.

ion mesuré	efficacité totale mesurée	incertitude globale en %	efficacité cible-source	incertitude globale en %
<sup>13</sup> N <sup>+</sup>	$6,7 \cdot 10^{-3}$	8	$1,3 \cdot 10^{-2}$	12
<sup>13</sup> N <sup>3+</sup>	$4,7 \cdot 10^{-4}$	18	$8,9 \cdot 10^{-4}$	20
<sup>12</sup> C <sup>13</sup> N <sup>+</sup>	$4,8 \cdot 10^{-4}$	10	$9,1 \cdot 10^{-4}$	14
<sup>13</sup> N <sup>16</sup> O <sup>+</sup>	$3,2 \cdot 10^{-4}$	36	$6,1 \cdot 10^{-4}$	37

**Tab. II-12** - Efficacités cible-source mesurées, pour l'<sup>13</sup>N, pour une température de cible comprise entre 1700 K et 2300 K

Les efficacités cible-source mesurées, pour quelques états de charge de l'<sup>13</sup>N et pour quelques molécules contenant de l'<sup>13</sup>N, sont très sensiblement plus faibles que celles mesurées pour l'<sup>14</sup>O. L'efficacité totale, pour l'<sup>13</sup>N, est environ 5 à 10 fois plus faible que celle obtenue pour l'<sup>14</sup>O. Nous nous attendions, cependant, à une différence beaucoup plus drastique, étant donné qu'il n'existe pas d'élément volatile, à basse température, constitué de l'association d'un seul atome d'<sup>13</sup>N avec du carbone de la cible. Mais la durée de vie de l'<sup>13</sup>N (soit 597,9 s) est très longue (environ 8 fois plus que celle de l'<sup>14</sup>O), or, plus la durée de vie est longue, plus l'efficacité de diffusion-effusion tend vers celle d'un isotope stable, en régime permanent, c'est-à-dire 100 % (si la température de la cible est suffisamment élevée). Cette efficacité risque donc de chuter très fortement pour les isotopes d'azote ayant des temps de vie de l'ordre de quelques secondes. Si on ajoute à cela l'identification difficile de l'<sup>13</sup>N, on conclut qu'il faudrait refaire des mesures d'efficacité pour des isotopes d'azote possédant des temps de vie beaucoup plus courts et un rayonnement  $\gamma$  caractéristique. Par exemple :

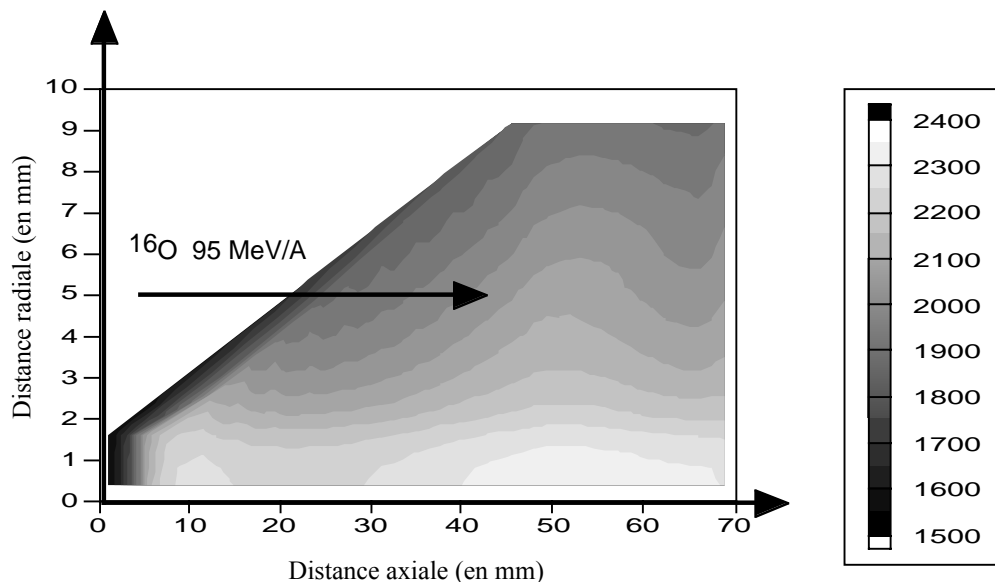
- l'<sup>17</sup>N, de durée de vie  $T_{1/2} = 4,17$  s, dont la décroissance radioactive est accompagnée de l'émission d'un  $\gamma$  caractéristique d'énergie 870,7 keV avec un rapport d'embranchement de 3,3 %.

- l' $^{18}\text{N}$ , de durée de vie  $T_{1/2} = 624$  ms, dont la décroissance radioactive est accompagnée de l'émission d'un  $\gamma$  caractéristique d'énergie 1982 keV avec un rapport d'embranchement de 72 %.

Maintenant que nous savons que nous pouvons produire des intensités importantes de faisceaux d'oxygène radioactif et des intensités non-négligeables d' $^{13}\text{N}$ , il est important de prédire les taux de production qui sont attendus sur SPIRAL. Nous allons donc exposer les résultats des mesures de taux de production de l' $^{15}\text{O}$ , de l' $^{14}\text{O}$  et de l' $^{13}\text{N}$ , à partir d'un faisceau primaire d' $^{16}\text{O}$  de 95.A MeV. Ces mesures ont été effectuées sur le banc de tests SIRa, au cours de cette même expérience. Nous en déduisons les prédictions pour SPIRAL.

#### **II.2.4 Mesure des taux de production de l' $^{15}\text{O}$ , de l' $^{14}\text{O}$ et de l' $^{13}\text{N}$ sur le banc de tests SIRa et prévisions pour SPIRAL**

Le faisceau primaire utilisé était un faisceau d' $^{16}\text{O}$  de 95.A MeV. Il a été implanté directement dans la cible, de l'ensemble cible-source, pour effectuer les mesures de taux de production. La puissance utilisée était la puissance maximale autorisée sur le banc de tests SIRa, soit 400 W. Cette puissance n'est pas suffisante pour chauffer suffisamment la cible, afin de faciliter la diffusion des éléments radioactifs produits (cf. figure II-8 dans la partie II.2.3.3). Une puissance de chauffage par l'axe de 1700 W a donc été ajoutée à la puissance déposée par le faisceau primaire. La distribution en température, obtenue dans la cible, est représentée dans la figure II-9.



**Fig. II-9** - Distribution en température, obtenue dans la cible, en associant 400 W d'un faisceau primaire d' $^{16}\text{O}$  de 95.A MeV, avec une puissance de chauffage par l'axe de 1700 W. Les températures indiquées sont en Kelvin

On constate que la température varie, de 1800 K à 2300 K, suivant la partie de cible considérée. La distribution en température est cependant plus homogène que celle obtenue pendant les mesures d'efficacité (cf. figure II-6 dans la partie II.2.3).

### II.2.4.1 Taux de production de l'<sup>15</sup>O et de l'<sup>14</sup>O

Les taux de production moyens, obtenus pour l'<sup>14</sup>O ( $T_{1/2} = 70,6$  s) et pour l'<sup>15</sup>O ( $T_{1/2} = 122$  s), sont représentés dans le tableau II-13. Comme l'<sup>15</sup>O est émetteur  $\beta^+$  uniquement vers le niveau fondamental de l'<sup>15</sup>N (pas de  $\gamma$  caractéristique), ses taux de production ont été mesurés à partir du rayonnement  $\gamma$  d'énergie 511 keV, après extraction du bruit de fond. Nous avons également déterminé, à partir de l'équation I-13 (cf. partie I.3.1) basée sur la paramétrisation d'EPAX [Süm-00], le nombre de noyaux radioactifs d'<sup>14</sup>O et d'<sup>15</sup>O produits, par seconde, dans la cible. Nous avons obtenu  $4,1 \cdot 10^8$  p/s d'<sup>14</sup>O et  $3,3 \cdot 10^9$  p/s d'<sup>15</sup>O, pour 400 W d'un faisceau primaire d'<sup>16</sup>O de 95.A MeV. Nous en avons alors déduit l'efficacité totale, du système de production installé sur le banc de tests SIRa, obtenue pour chacun des faisceaux d'ions radioactifs mesurés. Le résultat est également représenté dans le tableau II-13.

ion mesuré	taux de production moyen normalisé à 400 W de faisceau primaire	incertitude globale en %	efficacité totale calculée
<sup>14</sup> O <sup>+</sup>	$7,6 \cdot 10^6$ p/s	5	$1,8 \cdot 10^{-2}$
<sup>14</sup> O <sup>2+</sup>	$2,3 \cdot 10^6$ p/s	6	$5,5 \cdot 10^{-3}$
<sup>14</sup> O <sup>3+</sup>	$1,1 \cdot 10^6$ p/s	6	$2,7 \cdot 10^{-3}$
<sup>14</sup> O <sup>4+</sup>	$6,6 \cdot 10^5$ p/s	6	$1,6 \cdot 10^{-3}$
<sup>14</sup> O <sup>5+</sup>	$2,5 \cdot 10^5$ p/s	7	$6,1 \cdot 10^{-4}$
<sup>14</sup> O <sup>6+</sup>	$2,2 \cdot 10^5$ p/s	6	$5,3 \cdot 10^{-4}$
<sup>14</sup> O <sup>7+</sup>	$9,0 \cdot 10^3$ p/s	5	$2,2 \cdot 10^{-5}$
<sup>14</sup> O <sup>8+</sup>	$7,7 \cdot 10^2$ p/s	8	$1,9 \cdot 10^{-6}$
<sup>12</sup> C <sup>14</sup> O <sup>+</sup>	$3,1 \cdot 10^6$ p/s	6	$7,4 \cdot 10^{-3}$
<sup>14</sup> N <sup>14</sup> O <sup>+</sup>	$2,5 \cdot 10^5$ p/s	9	$6,0 \cdot 10^{-4}$
<sup>14</sup> OH <sup>+</sup>	$1,7 \cdot 10^6$ p/s	12	$4,1 \cdot 10^{-3}$
<sup>14</sup> O <sup>16</sup> O <sup>+</sup>	$5,6 \cdot 10^4$ p/s	12	$1,3 \cdot 10^{-4}$
<sup>15</sup> O <sup>+</sup>	$2,5 \cdot 10^8$ p/s	6	$7,5 \cdot 10^{-2}$
<sup>15</sup> O <sup>3+</sup>	$4,0 \cdot 10^7$ p/s	6	$1,2 \cdot 10^{-2}$

**Tab. II-13** - Taux de production moyens mesurés, pour l'<sup>14</sup>O et pour l'<sup>15</sup>O, à partir d'un faisceau primaire d'<sup>16</sup>O de 95.A MeV. Les efficacités totales indiquées ont été déduites des taux de production théoriques dans la cible, calculés à partir de l'équation I-13 (cf. partie I.3.1) basée sur la paramétrisation d'EPAX [Süm-00]

Les efficacités totales calculées, pour l'<sup>14</sup>O, sont comparées, dans le tableau II-14, avec les efficacités totales mesurées précédemment (cf. partie II.2.3.1). Ces deux efficacités sont proches l'une de l'autre. La paramétrisation d'EPAX semble donc un bon modèle de prédiction des sections efficaces de production des noyaux radioactifs produits par fragmentation du projectile.

Les distributions en état de charge obtenues pendant les mesures d'efficacité et celles de taux de production sont différentes. Les écarts entre les états de charge sont moins

accentués pendant les mesures de taux de production. Si cette variation de la distribution en état de charge avait été due à une variation de pression dans la source d'ions suite à l'implantation du faisceau primaire dans la cible, cela se serait traduit par une accentuation des écarts entre les différents états de charge. La cause en est donc autre. Ces différences peuvent être expliquées par un réglage différent de la source d'ions pendant les mesures d'efficacité et celles de taux de production.

ion mesuré	efficacité totale mesurée	incertitude globale en %	efficacité totale calculée	incertitude globale en %
$^{14}\text{O}^+$	$2,5 \cdot 10^{-2}$	6	$1,8 \cdot 10^{-2}$	5
$^{14}\text{O}^{2+}$	$7,7 \cdot 10^{-3}$	6	$5,5 \cdot 10^{-3}$	6
$^{14}\text{O}^{3+}$	$4,0 \cdot 10^{-3}$	6	$2,7 \cdot 10^{-3}$	6
$^{14}\text{O}^{4+}$	$2,1 \cdot 10^{-3}$	8	$1,6 \cdot 10^{-3}$	6
$^{14}\text{O}^{5+}$	$3,4 \cdot 10^{-4}$	19	$6,1 \cdot 10^{-4}$	7
$^{14}\text{O}^{6+}$	$2,0 \cdot 10^{-4}$	9	$5,3 \cdot 10^{-4}$	6
$^{14}\text{O}^{7+}$	$8,3 \cdot 10^{-6}$	10	$2,2 \cdot 10^{-5}$	5
$^{14}\text{O}^{8+}$	$7,1 \cdot 10^{-7}$	11	$1,9 \cdot 10^{-6}$	8
$^{12}\text{C}^{14}\text{O}^+$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	5	$7,4 \cdot 10^{-3}$	6
$^{14}\text{OH}^+$	$7,1 \cdot 10^{-3}$	8	$4,1 \cdot 10^{-3}$	12
$^{14}\text{N}^{14}\text{O}^+$	$6,7 \cdot 10^{-4}$	8	$6,0 \cdot 10^{-4}$	9
$^{14}\text{O}^{16}\text{O}^+$	$1,8 \cdot 10^{-4}$	12	$1,3 \cdot 10^{-4}$	12

**Tab. II-14** – Comparaison, pour l' $^{14}\text{O}$ , entre les efficacités totales calculées à partir des taux de production théoriques dans la cible (basés sur la paramétrisation d'EPAX [Süm-00]) et les efficacités totales mesurées (cf. tableau II-11 dans la partie II.2.3.1)

Les efficacités totales calculées pour l' $^{15}\text{O}$  (cf. tableau II-13) sont trois fois plus importantes que celles mesurées pour l' $^{14}\text{O}$  (cf. tableau II-14). De tels écarts n'ont pas été observés entre le  $^{19}\text{Ne}$  et  $^{18}\text{Ne}$ , produits à partir d'un faisceau primaire de  $^{20}\text{Ne}$ , ni entre l' $^{35}\text{Ar}$  et l' $^{34}\text{Ar}$ , produits à partir d'un faisceau primaire d' $^{36}\text{Ar}$  [Lan-01]. La paramétrisation d'EPAX n'est donc pas responsable de tels écarts. Nous avons vu précédemment que l'efficacité de diffusion a atteint sa valeur de plateau, soit 100 %, pour une température moyenne de cible de l'ordre de 2000 K (cf. figure II-8 dans la partie II.2.3.3). Les pertes liées à la diffusion ne sont donc pas incriminées non plus. L'efficacité de transformation de l'oxygène en CO ne dépend pas de l'isotope d'oxygène considéré. Cette réaction chimique n'est donc pas la cause non plus de ce facteur 3. Par conséquent, seules l'effusion entre les grains de la cible, l'effusion de la molécule CO entre la cible et la source d'ions et l'effusion éventuelle de l'oxygène dans la source d'ions peuvent expliquer ce facteur 3 entre les efficacités mesurées pour l' $^{14}\text{O}$  et celles calculées pour l' $^{15}\text{O}$  :

- pour l'effusion entre les grains de la cible, le lieu où se produit l'association entre un atome d'oxygène et un atome de carbone de la cible est important, car le temps de collage de CO est beaucoup plus faible que celui de l'oxygène (8 ms au lieu de 140 ms

pour le temps de collage sur du quartz à une température d'environ 600 K [Wel-96]). La température de la cible est très élevée (de l'ordre de 2000 K), donc les différences de temps de collage entre O et CO sont moins accentuées (cf. équation I-8 dans la partie I.2.1.2). Cependant, en raison de la très forte sensibilité à l'enthalpie d'adsorption (cf. tableau I-3 dans la partie I.2.1.2), qui est une propriété caractéristique associée au collage sur des parois, ces différences risquent tout de même de rester conséquentes.

- pour l'effusion de la molécule CO entre la cible et la source d'ions, c'est le temps de collage moyen de CO sur du carbone et de l'aluminium qui intervient.
- pour l'éventuelle effusion de l'oxygène dans la source d'ions, elle intervient que si l'oxygène, issu de la brisure de CO dans la source d'ions, se neutralise dans la source et vient heurter une paroi.

#### **II.2.4.2 Cas particulier de l'<sup>13</sup>O**

Pendant les mesures de taux de production sur le banc de tests SIRa, nous n'avons pas observé la présence d'un faisceau d'<sup>13</sup>O ( $T_{1/2} = 8,58$  ms). D'après l'équation I-13 (cf. partie I.3.1) basée sur la paramétrisation d'EPAX [Süm-00], il était produit  $2,9 \cdot 10^7$  p/s d'<sup>13</sup>O pour 400 W d'un faisceau primaire d'<sup>16</sup>O de 95.A MeV.

#### **II.2.4.3 Prévisions des taux de production de l'<sup>14</sup>O et de l'<sup>15</sup>O pour SPIRAL**

Nous avons déduit, à partir des taux de production de l'<sup>14</sup>O et de l'<sup>15</sup>O mesurés sur le banc de tests SIRa, les prévisions des taux de production, de ces deux noyaux, pour SPIRAL. Ces prévisions sont rassemblées dans le tableau II-15.

faisceau primaire	énergie par nucléon en MeV	puissance (en kW)	faisceau d'ions radioactifs	intensité avant post-accelération (en p/s)	énergie minimale par nucléon en MeV	énergie maximale par nucléon en MeV
<sup>16</sup> O	95	1,4	<sup>14</sup> O <sup>2+</sup>	$4,0 \cdot 10^6$	1,7	5 - 6
			<sup>14</sup> O <sup>3+</sup>	$2,0 \cdot 10^6$	~ 3	12 - 13
			<sup>14</sup> O <sup>4+</sup>	$1,2 \cdot 10^6$	5 - 6	~ 19
			<sup>14</sup> O <sup>5+</sup>	$4,4 \cdot 10^5$	8 - 9	~ 24
			<sup>15</sup> O <sup>2+</sup>	$1,4 \cdot 10^8$	1,7	~ 5
			<sup>15</sup> O <sup>3+</sup>	$6,9 \cdot 10^7$	2,8	10,5
			<sup>15</sup> O <sup>4+</sup>	$4,1 \cdot 10^7$	~ 5	~ 18
			<sup>15</sup> O <sup>5+</sup>	$1,6 \cdot 10^7$	7 - 8	~ 22

**Tab. II-15** - Prévisions des taux de production de l'<sup>14</sup>O et de l'<sup>15</sup>O, pour SPIRAL, à partir des taux de production mesurés sur le banc de tests SIRa

La puissance de 1,4 kW correspond à une limite temporaire (en cours actuellement [Gan-3]). Par rapport aux taux mesurés sur SIRa, un facteur de perte de 0,5, lié à la transmission de la ligne très basse énergie de SPIRAL, a été introduit pour les taux de SPIRAL.

#### **II.2.4.4 Taux de production de $^{13}\text{N}$**

Les taux de production moyens, mesurés pour  $^{13}\text{N}$  ( $T_{1/2} = 597,9$  s) sur le banc de tests SIRa, sont présentés dans le tableau II-16. Nous avons également déterminé, à partir de l'équation I-13 (cf. partie I.3.1) basée sur la paramétrisation d'EPAX [Süm-00], le nombre de noyaux radioactifs d' $^{13}\text{N}$  produits, par seconde, dans la cible. Nous avons obtenu  $2,1 \cdot 10^9$  p/s d' $^{13}\text{N}$ , pour 400 W d'un faisceau primaire d' $^{16}\text{O}$  de 95.A MeV. Nous en avons alors déduit l'efficacité totale, du système de production installé sur le banc de tests SIRa, obtenue pour chacun des faisceaux d'ions radioactifs mesurés. Le résultat est également représenté dans le tableau II-16.

ion mesuré	taux de production moyen normalisé à 400 W de faisceau primaire	incertitude globale en %	efficacité totale calculée
$^{13}\text{N}^+$	$1,4 \cdot 10^7$ p/s	6	$6,9 \cdot 10^{-3}$
$^{13}\text{N}^{2+}$	$2,6 \cdot 10^6$ p/s	7	$1,2 \cdot 10^{-3}$
$^{13}\text{N}^{3+}$	$4,2 \cdot 10^5$ p/s	7	$2,0 \cdot 10^{-4}$
$^{12}\text{C}^{13}\text{N}^+$	$2,1 \cdot 10^5$ p/s	6	$1,0 \cdot 10^{-4}$

**Tab. II-16** - Taux de production moyens, pour  $^{13}\text{N}$ , mesurés sur le banc de tests SIRa à partir d'un faisceau primaire d' $^{16}\text{O}$  de 95.A MeV. Les efficacités totales indiquées ont été déduites des taux de production théoriques dans la cible, calculés à partir de l'équation I-13 (cf. partie I.3.1) basée sur la paramétrisation d'EPAX [Süm-00]

Les efficacités totales calculées à partir des taux de production mesurés, pour  $^{13}\text{N}$ , sont comparées, dans le tableau II-17, avec les efficacités totales mesurées précédemment (cf. tableau II-12 dans la partie II.2.3.4).

ion mesuré	efficacité totale mesurée	incertitude globale en %	efficacité totale calculée	incertitude globale en %
$^{13}\text{N}^+$	$6,7 \cdot 10^{-3}$	8	$6,9 \cdot 10^{-3}$	6
$^{13}\text{N}^{3+}$	$4,7 \cdot 10^{-4}$	18	$2,0 \cdot 10^{-4}$	7
$^{12}\text{C}^{13}\text{N}^+$	$4,8 \cdot 10^{-4}$	10	$1,0 \cdot 10^{-4}$	6

**Tab. II-17** – Comparaison, pour  $^{13}\text{N}$ , entre les efficacités totales calculées à partir du taux de production théorique dans la cible (basé sur la paramétrisation d'EPAX [Süm-00]) et les efficacités totales mesurées (cf. tableau II-12 dans la partie II.2.3.4)

Les deux efficacités, pour  $^{13}\text{N}^+$ , sont similaires. Par contre, la distribution en état de charge est différente dans les deux cas, probablement en raison d'un fonctionnement différent de la source d'ions.

#### **II.2.4.5 Prévisions des taux de production de $^{13}\text{N}$ pour SPIRAL**

Les taux de production de  $^{13}\text{N}$ , mesurés sur le banc de tests SIRa, ne sont pas optimums. En effet, un faisceau primaire d' $^{16}\text{O}$  a été utilisé au lieu d'un faisceau primaire d' $^{14}\text{N}$  (cf. amélioration des taux de production dans la partie I.3.1). Nous avons déduit, à partir des taux de production de  $^{13}\text{N}$  mesurés sur le banc de tests SIRa, les prévisions des taux de production de  $^{13}\text{N}$  pour SPIRAL en utilisant un faisceau primaire d' $^{14}\text{N}$ . Ces prévisions sont présentées dans le tableau II-18. Par rapport aux taux mesurés sur SIRa, un facteur de perte de 0,5, lié à la transmission de la ligne très basse énergie de SPIRAL, a été introduit pour les taux de SPIRAL.

faisceau primaire	énergie par nucléon en MeV	puissance (en kW)	faisceau d'ions radioactifs	intensité avant post-accelération (en p/s)	énergie minimale par nucléon en MeV	énergie maximale par nucléon en MeV
$^{14}\text{N}$	95	1,4	$^{13}\text{N}^{2+}$	$8,4 \cdot 10^6$	1,7	6 - 7
			$^{13}\text{N}^{3+}$	$1,4 \cdot 10^6$	3 - 4	~ 11

**Tab. II-18** - Prévisions des taux de production de  $^{13}\text{N}$ , pour SPIRAL, à partir des taux de production mesurés sur le banc de tests SIRa

Les efficacités totales mesurées, pour l'azote, sur le banc de tests SIRa (cf. partie II.2.3.4) l'ont été avec un isotope d'azote à temps de vie très long ( $T_{1/2}(^{13}\text{N}) = 597,9 \text{ s}$ ). Il n'est donc pas raisonnable d'extrapoler ces efficacités pour les isotopes riches en neutrons, dont la durée de vie la plus longue est de 7,1 s. Ceci d'autant plus que nous avons vu précédemment (cf. début de la partie II.2.2) que l'efficacité totale du système doit être beaucoup plus faible pour la production des faisceaux d'ions radioactifs d'azote que pour la production des faisceaux d'ions radioactifs d'oxygène. En effet, il n'existe pas d'élément volatile, à basse température, constitué de l'association d'un seul atome d'azote avec du carbone de la cible (l'effusion de l'azote n'est donc pas facilitée). Il serait donc prudent de faire des mesures de taux de production pour les isotopes d'azote riches en neutrons. Pour mieux appréhender les pertes, il serait intéressant de mesurer l'efficacité avec un isotope à temps de vie bien plus court : par exemple,  $^{17}\text{N}$  ( $T_{1/2} = 4,17 \text{ s}$ ) dont l'identification est facilitée par la raie  $\gamma$  caractéristique d'énergie 870,7 keV et de rapport d'embranchement 3,3 %.

Un point reste tout de même à élucider : sous quelle forme moléculaire l'azote a été transporté de la cible jusqu'à la source d'ions. Les molécules  $\text{C}_x\text{N}$  ne sont pas des molécules volatiles à température de salle (température du tube de transfert). Par contre,  $\text{C}_2\text{N}_2$  est bien



une molécule volatile à de telles températures (sa température d'évaporation est de 252 K). Mais la probabilité d'association de deux atomes d'azote, produits par fragmentation du projectile dans la cible, est beaucoup trop faible. La question n'est donc pas résolue pour l'instant.

### **II.2.5 Taux de production du $^{18}\text{F}$**

Un faisceau de  $^{18}\text{F}^{4+}$  ( $T_{1/2} = 109,7$  minutes) a été directement produit sur SPIRAL, lors de l'expérience d'ouverture de l'installation [Vil-02], par implantation d'un faisceau primaire de  $^{20}\text{Ne}$  de 95.A MeV sur la cible SPIRAL. Le taux de production mesuré était de  $2.10^5$  p/s en sortie du cyclotron CIME pour 0,2  $\mu\text{Ap}$  de faisceau primaire (380 W). Ce taux correspond à environ  $8.10^5$  p/s en sortie de l'ensemble cible-source.

La détermination, à partir de l'équation I-13 (cf. partie I.3.1) basée sur la paramétrisation d'EPAX [Süm-00], du nombre de noyaux radioactifs de  $^{18}\text{F}$  produits, par seconde, dans la cible donne un taux de  $3,1.10^9$  p/s pour 380 W d'un faisceau primaire de  $^{20}\text{Ne}$  de 95.A MeV. L'efficacité cible-source, correspondant au taux de production mesuré sur SPIRAL, est donc de l'ordre de  $3.10^{-4}$ . Etant donnée la durée de vie très longue du  $^{18}\text{F}$ , cette efficacité est très faible. Cela est compréhensible :

- le fluor est un élément condensable (il se colle sur les parois froides du tube de transfert).
- il n'existe pas de molécules volatiles à température de salle (température du tube de transfert) constituées de l'association d'un seul atome de fluor avec du carbone de la cible.  $\text{CF}_4$  est bien une molécule volatile à de telles températures (sa température d'ébullition est de  $-128^\circ\text{C}$ ), mais elle n'a aucune chance de se former dans une cible en carbone.

En utilisant 1500 W d'un faisceau primaire de  $^{19}\text{F}$  de 85.A MeV, le taux de production attendu, sur SPIRAL, pour le  $^{18}\text{F}^{4+}$  est d'environ  $1.10^6$  p/s en sortie du cyclotron CIME.

## **II.3 Perspectives**

L'expérience réalisée, au cours de cette thèse, concernant la production des faisceaux d'oxygène radioactif, a montré que le transport de l'oxygène radioactif, entre la cible et la source d'ions, est possible en utilisant une forme moléculaire volatile ( $\text{CO}$ ) à température de salle. Cette solution est généralisable : pour produire des faisceaux d'ions radioactifs d'un élément condensable particulier, une solution est de former, dans la cible, une molécule volatile à température de salle constituée de l'élément radioactif d'intérêt associé à d'autres éléments présents dans la cible.

La production de faisceaux d'ions radioactifs d'éléments condensables nécessite donc une étude au cas par cas, puisqu'il faut trouver, pour chaque cas, la bonne forme moléculaire volatile et la cible appropriée. Certains éléments condensables ne sont pas productibles par cette méthode, car aucune forme moléculaire volatile, à température de salle, n'existe pour ces éléments. C'est le cas, par exemple, pour tous les alcalins.

Pour les éléments les plus légers, les solutions suivantes devraient être étudiées :

- production des faisceaux de **bore** radioactif, en passant par la forme moléculaire volatile **BF<sub>3</sub>** (température d'ébullition de  $-101^{\circ}\text{C}$ ), en utilisant une cible en **carbone** (sublimation à  $3550^{\circ}\text{C}$ ) dans laquelle aura été introduit des impuretés **CF<sub>4</sub>** (cette introduction de **CF<sub>4</sub>** dans une cible en carbone a déjà été réalisée à Orsay [Put-81][Sau-84]).
- production des faisceaux de **carbone** radioactif, en passant par la forme moléculaire volatile **CO** (température d'ébullition de  $-191,5^{\circ}\text{C}$ ), en utilisant, par exemple, une cible de **BeO** (fusion à  $2580^{\circ}\text{C}$  et ébullition à  $3900^{\circ}\text{C}$ ) ou une cible de **MgO** (fusion à  $2830^{\circ}\text{C}$  et ébullition à  $3600^{\circ}\text{C}$ ) ou encore une cible de **ZrO<sub>2</sub>** (fusion à  $2710^{\circ}\text{C}$ ).
- production des faisceaux d'**azote** radioactif, en passant par la forme moléculaire volatile **NO** (température d'ébullition de  $-151,8^{\circ}\text{C}$ ), en utilisant, par exemple, une des cibles d'oxyde citée pour produire le carbone.
- production des faisceaux d'**azote** radioactif, en passant par la forme moléculaire volatile **N<sub>2</sub>** (température d'ébullition de  $-196^{\circ}\text{C}$ ), en utilisant, par exemple, une cible de **ZrN** (fusion à  $2960^{\circ}\text{C}$ ) ou une cible de **TaN** (fusion à  $3090^{\circ}\text{C}$ ) ou encore une cible de **TiN** (fusion à  $3290^{\circ}\text{C}$ ).
- production des faisceaux de **fluor** radioactif, en passant par la forme moléculaire volatile **F<sub>2</sub>** (température d'ébullition de  $-188^{\circ}\text{C}$ ), en utilisant une cible en **carbone** (sublimation à  $3550^{\circ}\text{C}$ ) dans laquelle aura été introduit des impuretés **CF<sub>4</sub>**.



# CHAPITRE III

## *La production des faisceaux d'alcalins radioactifs avec MONOLITHE*

L'ensemble cible-source MONOLITHE (MONOchargé LITHium Exotique) a pour but de produire des faisceaux d'alcalins radioactifs. Cet ensemble cible-source est plus compact que ceux de SPIRAL afin d'éviter toute paroi froide entre la cible et la source d'ions. La source utilisée est celle qui convient le mieux pour les alcalins, c'est-à-dire, une source à cavité chaude (basée sur le principe de fonctionnement des sources à ionisation de surface). Ce type de source favorise la formation d'ions monochargés.

Les faisceaux de lithium radioactif, obtenus à partir de MONOLITHE, peuvent être directement accélérés par le cyclotron CIME (cf. partie I.3.2.2). Par contre, ce n'est pas le cas pour les autres alcalins. Ces derniers doivent subir une transformation  $1+/n+$  avant de pouvoir être accélérés par le cyclotron CIME. Les faisceaux d'alcalins radioactifs deviendraient alors de nouveaux faisceaux radioactifs disponibles à partir de SPIRAL. Les faisceaux d'alcalins radioactifs, obtenus à partir de l'ensemble cible-source MONOLITHE, peuvent également être directement utilisés comme faisceaux pour la nouvelle ligne LIRAT [Aug-00] à très basse énergie.

Dans la première partie de ce chapitre, après avoir expliqué brièvement pourquoi un tel ensemble cible-source est le plus adapté pour la production des faisceaux d'alcalins radioactifs, son principe de fonctionnement est abordé. Une description de l'ensemble cible-source MONOLITHE est effectuée et des prévisions d'efficacité totale pour la production de faisceaux de lithium et de sodium radioactifs sont établies.

Les premiers résultats expérimentaux de MONOLITHE sont exposés dans la deuxième partie de ce chapitre. Les taux de production des faisceaux de sodium et de lithium radioactifs obtenus sont présentés et comparés aux prévisions théoriques effectuées précédemment.

La troisième partie de ce chapitre est consacrée à la caractérisation de l'ensemble cible-source MONOLITHE, pour la production des faisceaux de lithium et de sodium radioactifs, à partir de la « méthode globale » et en utilisant des mesures expérimentales effectuées pour différents isotopes et différentes températures de cible. Enfin, les perspectives envisagées pour ce nouvel ensemble cible-source sont présentées.

### **III.1 MONOLITHE : un ensemble plus compact basé sur la méthode ISOL**

Des faisceaux d'alcalins radioactifs ont déjà été produits, au GANIL, en utilisant la fragmentation en vol du projectile [Ann-87][Ann-92]. Cependant, la quantité des noyaux radioactifs produits est limitée par l'épaisseur de la cible, car la technique nécessite l'utilisation d'une cible mince. De plus, les faisceaux radioactifs produits ont de mauvaises qualités optiques (cf. fin de la partie I.3.1) et une grande énergie (plusieurs dizaines de MeV par nucléon).

L'utilisation de la méthode ISOL permet d'obtenir de bonnes qualités optiques et d'augmenter la quantité de noyaux radioactifs produits en utilisant une cible épaisse. L'énergie du faisceau secondaire, après accélération dans CIME, peut aller de 1,7.A à 24,8.A MeV (suivant l'état de charge sélectionné).

Cependant, les alcalins sont des éléments condensables. Donc, en utilisant un ensemble cible-source de SPIRAL, une grande partie d'entre eux sont perdus, pendant le processus d'effusion, par collage sur les parois froides. C'est pourquoi, un ensemble plus approprié a dû être adopté.

#### **III.1.1 Choix d'un ensemble cible-source approprié**

Il n'existe pas de molécules volatiles, à basse température (autour de 20°C), constituées de l'association de lithium [Lit-1], ou de sodium [Sod-1], avec un autre élément. Par conséquent, la solution du gaz porteur (cf. fin de la partie I.2.1.2) n'est pas envisageable. L'utilisation d'un ensemble cible-source de SPIRAL, en modifiant la cible afin de pouvoir former une molécule volatile, à température de salle, constituée de l'alcalin radioactif d'intérêt associé à d'autres éléments contenus dans la cible, n'est donc pas une solution possible.

Celle qui consiste à éviter toute paroi froide entre la cible et la source d'ions, tout en conservant une source d'ions ECR, a été testée, au GANIL, avec la conception de l'ensemble Shypie [Lec-97-a]. Cependant, le test, en ligne, de cet ensemble a montré qu'une partie des alcalins était déjà ionisée (à l'état 1+) avant d'atteindre le plasma de la source d'ions. De ce fait, ils étaient repoussés par le potentiel plasma positif formé dans la source.

L'utilisation d'une source fonctionnant sur le principe des sources à ionisation de surface [Bro-89][Wol-95], au lieu d'une source d'ions ECR, est donc apparue comme une solution plus appropriée. De plus, l'utilisation d'une cavité permet d'augmenter l'efficacité d'ionisation d'une telle source.

### **III.1.2 Principe de fonctionnement d'une source à cavité chaude**

Une source à cavité chaude fonctionne sur le même principe d'ionisation qu'une source à ionisation de surface. La différence réside dans le fait que l'atome à ioniser effectue plusieurs collisions avant de pouvoir sortir de la cavité. Par conséquent, sa probabilité d'ionisation est plus élevée.

#### **III.1.2.1 Principe d'ionisation**

Le principe d'ionisation est basé sur l'interaction entre un atome et une paroi métallique lors d'un contact. En effet, si la température de la paroi métallique est suffisamment élevée, cette interaction peut conduire à la formation d'un ion monochargé positif ou négatif. Une source à cavité chaude constitue donc une source d'ions monochargés.

Plusieurs paramètres sont à prendre en considération pour quantifier le nombre d'ions monochargés positifs créés lors d'un contact :

- le travail de sortie  $W_S$ . Ce paramètre représente l'énergie nécessaire pour arracher un électron du métal.
- le potentiel de première ionisation,  $I$ , de l'atome qui vient toucher la paroi métallique.
- la température  $T$  de la paroi métallique.

Lorsque le rapport  $W_S - I$  est positif, la probabilité qu'un électron de la dernière couche électronique de l'atome passe, par effet tunnel, vers le métal est plus importante que le cas inverse. Si le rapport  $W_S - I$  est négatif, c'est la probabilité de capture d'un électron qui domine.

La probabilité  $P^+$  qu'un atome soit ionisé positivement par contact avec une surface métallique est représentée par la loi de Saha-Langmuir [Kin-23] :

$$P^+ = \left( 1 + \frac{g_0}{g_+} e^{\frac{I - W_S}{k_B T}} \right)^{-1} \quad (\text{III-1})$$

où  $g_0$  et  $g_+$  représentent les poids statistiques associés aux atomes et aux ions. Dans le cas où les atomes à ioniser sont des alcalins, le rapport  $g_0/g_+$  vaut 2. Toujours dans le cas des alcalins, pour que la probabilité  $P^+$  soit d'au moins 99 % à 2000 K, il faut que le rapport  $W_S - I$  soit supérieur à 0,91 eV.

Le potentiel de première ionisation des alcalins est représenté dans le tableau III-1. Il est accompagné du travail de sortie de quelques matériaux. Le tungstène oxydé W-Ox est le matériau qui permet d'obtenir la meilleure probabilité d'ionisation positive, puisque le rapport  $W_S - I$  est le plus élevé pour ce matériau.

Alors que la probabilité d'ionisation positive du lithium et du sodium, à 2000 K, est autour de 100 % avec du tungstène oxydé W-Ox, elle n'est plus que d'environ 18 % pour le sodium et 5 % pour le lithium avec du carbone. Les matériaux intermédiaires (Iridium et Platine) sont des matériaux plus efficaces que le carbone. Ils sont cependant plus chers.

élément considéré	potentiel de première ionisation (en eV)	travail de sortie (en eV)
Li	5,39	
Na	5,14	
K	4,34	
Rb	4,18	
Cs	3,89	
W-Ox		6,24
Pt		5,65
Ir		5,4
C [Rob-74]		5,0
Re		4,96
W		4,55

**Tab. III-1** - Potentiel de première ionisation des alcalins et travail de sortie de quelques matériaux [Stö-99][Lan-01]

Pour une source à ionisation de surface, l'efficacité d'ionisation d'un atome représente la probabilité  $P^+$  que l'atome soit ionisé positivement par contact. Donc, d'après l'équation III-1, plus le travail de sortie est élevé, plus l'efficacité d'ionisation de la source à ionisation de surface est élevée.

### III.1.2.2 Efficacité d'ionisation d'une source à cavité chaude

Pour une source à cavité chaude, l'efficacité d'ionisation peut-être exprimée en fonction de la probabilité  $P^+$  qu'un atome soit ionisé positivement par contact et, donc, en fonction de l'efficacité d'ionisation d'une source à ionisation de surface. Elle est exprimée de la manière suivante [Kir-90] :

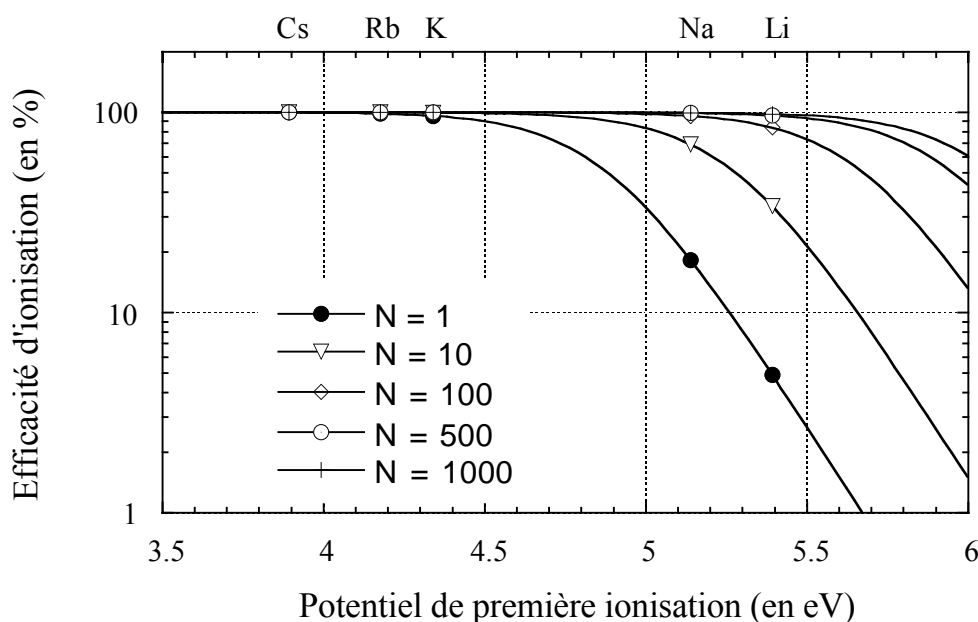
$$\xi_{\text{ion}} = \frac{P^+ N}{1 - P^+ (1 - N)} = \frac{N}{N + \frac{g_0}{g_+} e^{\frac{I - W_s}{k_B T}}} \quad (\text{III-2})$$

$$\text{avec} \quad N = \omega \chi \quad (\text{III-3})$$

où  $\omega$  représente la probabilité qu'une particule ionisée, par ionisation de surface, sorte de la cavité en restant ionisée et  $\chi$ , le nombre moyen de collisions nécessaire pour qu'une particule sorte de la cavité. Dans le cas d'une source à ionisation de surface, le produit  $\omega \chi$  (soit  $N$ ) vaut 1.

L'efficacité d'ionisation, à 2000 K, d'une source à cavité chaude en carbone est représentée, dans la figure III-1, en fonction du potentiel de première ionisation. Pour  $N = 1$ , on retrouve l'efficacité d'ionisation d'une source à ionisation de surface en carbone. L'intérêt

du choix d'une source à cavité chaude apparaît immédiatement dans cette figure, puisque l'efficacité d'ionisation du lithium, dans une cavité chaude en carbone, est augmentée, pour une valeur de  $N$  autour de 100, de plus d'un ordre de grandeur (d'environ 5 % à environ 84 %) et celle du sodium passe d'environ 18 % à 96 %. Il est donc intéressant d'avoir une valeur de  $N$  élevée. Cependant, un compromis est nécessaire, car le nombre moyen de collisions dans la cavité,  $\chi$ , ne doit pas être trop important pour ne pas augmenter considérablement le temps d'effusion moyen (proportionnel à  $\chi$ ). D'après la figure III-1, une valeur de  $N$  entre 100 et 500 est suffisante pour obtenir une efficacité d'ionisation entre 84 % et 100 % pour le lithium et d'environ 100 % pour le sodium.



**Fig. III-1** - Efficacité d'ionisation, à 2000 K, d'une source à cavité chaude en carbone en fonction du potentiel de première ionisation. Le cas  $N = 1$  correspond à l'efficacité d'ionisation d'une source à ionisation de surface

### III.1.3 L'ensemble cible-source MONOLITHE

Le premier ensemble cible-source MONOLITHE réalisé [Mau-98][Lan-01] était constitué d'une cible en carbone et d'une source à ionisation de surface. Il possédait un ioniseur en tungstène oxydé W-Ox (efficacité d'ionisation des alcalins de 100 % à 2000 K). Les tests hors-ligne de MONOLITHE ont montré que le principe de fonctionnement d'un tel ensemble cible-source est bon. En effet, des faisceaux stables de lithium, de sodium, de potassium et même d'aluminium ( $I = 5,99$  eV) et de calcium ( $I = 6,11$  eV) ont pu être obtenus.

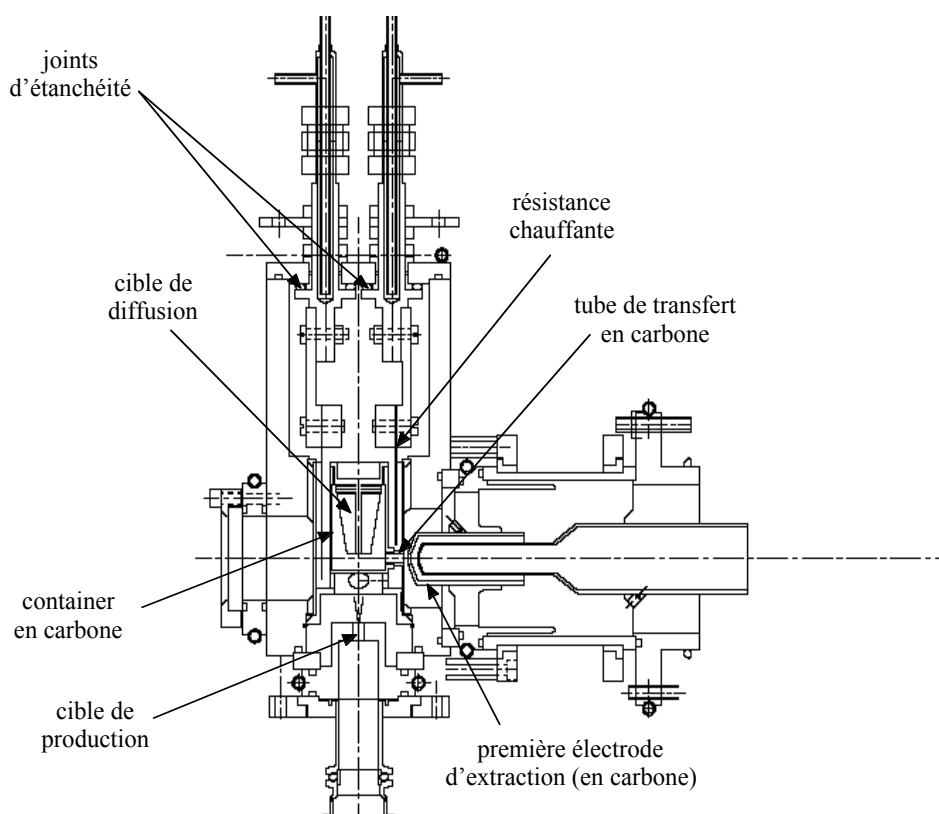
Un test en-ligne [Lan-01] a permis de se rendre compte que le tungstène oxydé se désoxyde à haute température. L'ioniseur devient alors équivalent, à 2000 K, à un ioniseur en tungstène pur ( $W_s$  de l'ordre de 4,5 eV au lieu des 6,2 eV du W-Ox). L'efficacité d'ionisation, à 2000 K, chute alors d'environ 100 % à environ 0,4 % pour le lithium. Une adjonction de gaz  $O_2$ , afin de maintenir l'oxydation du tungstène, n'est pas envisageable. En effet, le  $CO_2$  est le



produit thermodynamique (le plus stable) de la réaction  $C + O_2 \leftrightarrow CO_2$  et cette réaction, qui est en plus exothermique, provoquerait ainsi une évaporation de la cible (à cette réaction, s'ajoute la réaction  $C + 0,5 O_2 \leftrightarrow CO$  dont le produit thermodynamique CO est encore plus stable que  $CO_2$  pour une température supérieure à 982 K).

De plus, une contamination du ioniseur est possible par un dépôt de carbone issu de l'évaporation de carbone de la cible. Cette contamination s'appelle une activation de la source à ionisation de surface. Elle peut provoquer une diminution de l'efficacité d'ionisation.

Une version a finalement été conçue [Lan-01] en prenant en considération les expériences antérieures. Elle est représentée dans la figure III-2.



**Fig. III-2** - Dernière version de l'ensemble cible-source MONOLITHE

Dans cette version, le carbone a été choisi comme ioniseur à la place du tungstène oxydé (qui se désoxyde à haute température). Ce choix permet également d'éviter l'activation de la source par un dépôt de carbone (issu de l'évaporation de carbone de la cible et du conteneur), ce qui n'aurait pas été le cas si l'iridium, ou le platine, avait été choisi comme ioniseur.

La cible de diffusion en carbone (constituée de grains dont le diamètre ne dépasse pas 1  $\mu m$ ), fabriquée par POCO Graphite [Poc-99], est une cible à lamelles afin de diminuer le temps d'effusion dans la cible. Pour avoir la place de mettre des lamelles fines (0,5 mm d'épaisseur), le faisceau primaire a été choisi tel que le parcours du  $^{11}Li$  soit plus court. C'est pourquoi, la taille de la cible est adaptée à un faisceau primaire d' $^{18}O$  de 63.A MeV (au lieu de 76.A MeV qui est l'énergie maximale disponible au GANIL pour ce faisceau). Les pertes, en

production du  $^{11}\text{Li}$ , sont de l'ordre de 10% avec ce choix. La cible contient ainsi 32 lamelles de 0,5 mm d'épaisseur et espacées de 0,8 mm. Elle possède un angle de  $\pm 10$  degrés (pour la dispersion angulaire). Elle est vissée dans un container en carbone. Ce container est chauffé par un four externe (résistance ohmique) en carbone graphite. La sortie du container n'est possible que par un tube de transfert en carbone. La première électrode (en carbone) sert d'écran thermique pour la seconde électrode (en titane).

L'utilisation du container permet d'obtenir une source à cavité chaude maintenue à haute température (plus de 2000 K).

### **III.1.4 Estimation de l'efficacité totale de l'ensemble cible-source MONOLITHE pour la production des faisceaux d'alcalins radioactifs**

#### **III.1.4.1 Définition de l'efficacité totale de MONOLITHE**

Pour l'ensemble cible-source MONOLITHE, l'efficacité totale,  $\xi_{\text{totale}}$ , est exprimée de la manière suivante :

$$\xi_{\text{totale}} = \left( \frac{6}{\pi^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{k^2 + \frac{\lambda \rho^2}{\pi^2 D_0 e^{\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right)}}} \right) \left( \frac{1}{1 + \lambda \chi \left( D_{\text{vol}} \sqrt{\frac{m_n A}{3 k_B T}} + t_0 e^{\frac{\Delta H_a}{k_B T}} \right)} \right) \left( \frac{\omega \chi}{\omega \chi + \frac{g_0}{g_+} e^{\frac{I - W_s}{k_B T}}} \right) \cdot \text{Cste (III-4)}$$

où

- le premier terme entre parenthèses représente l'efficacité de diffusion hors d'un grain de rayon  $\rho$  (cf. équation I-4 dans la partie I.2.1.1).  $D_0$  et  $E_a$  sont les coefficients d'Arrhenius (cf. partie I.2.1.1).  $T$  est la température de la cible et  $\lambda$ , la constante de désintégration (égale à  $\ln 2 / T_{1/2}$ ).
- le second terme entre parenthèses représente l'efficacité d'effusion (cf. partie I.2.1.2).  $\chi$  est le nombre moyen de collisions.  $D_{\text{vol}}$  est la distance moyenne parcourue entre deux collages.  $m_n$  est la masse du nucléon et  $A$ , le nombre de nucléons de l'élément effusant.  $T$  est également la température du container (le bloc cible + container est chauffé par le four externe).  $t_0$  est la période de vibration associée au collage sur des parois.  $\Delta H_a$  est l'enthalpie d'adsorption associée au collage sur des parois.
- le troisième terme entre parenthèses représente l'efficacité d'ionisation d'une source à cavité chaude (cf. équation III-2 de la partie III.1.2.2).  $\omega$  est la probabilité qu'une particule ionisée, par ionisation de surface, sorte de la source à cavité chaude en restant ionisée. Le rapport  $g_0/g_+$  est un poids statistique.  $I$  est le potentiel de première ionisation et  $W_s$ , le travail de sortie.
- Cste représente l'efficacité de transport.

### **III.1.4.2 Valeurs des paramètres de l'ensemble cible-source**

Une grande partie des paramètres définis dans la partie précédente (cf. partie III.1.4.1) sont purement dépendants de l'ensemble cible-source. Les valeurs de ces paramètres sont les suivantes :

- $\rho$  est égal à  $0,5 \mu\text{m}$  pour la cible de diffusion de MONOLITHE.
- $\chi$  et  $D_{\text{vol}}$  ont été déterminés, pour MONOLITHE, dans la thèse de F. Landré-Pellemoine [Lan-01].  $\chi$  est environ égal à 800 et  $D_{\text{vol}}$ , à 1 cm.
- la valeur de  $t_0$  n'est pas connue pour le collage sur des parois en carbone. Par contre, elle est de  $2,4 \cdot 10^{-15}$  s pour le collage sur des parois en tantale [Kir-87-a]. En considérant la théorie de Frenkel et les mesures de Kirchner (cf. partie I.2.1.2), il est envisageable que la valeur de  $t_0$ , pour le collage sur des parois en carbone, soit incluse dans l'intervalle  $[1,0 \cdot 10^{-15} \text{ s} - 1,0 \cdot 10^{-13} \text{ s}]$ .
- la valeur de  $\omega$  est complètement inconnue pour l'ensemble cible-source MONOLITHE.
- le travail de sortie  $W_s$  est égal à 5,0 eV pour le carbone [Rob-74].

### **III.1.4.3 Estimation de l'efficacité totale de MONOLITHE pour la production des faisceaux de lithium radioactif**

Pour effectuer ces estimations, les valeurs des paramètres restants (cf. partie III.1.4.1) ont été établies :

- le rapport  $g_0/g_+$  est égal à 2 pour le lithium.
- le potentiel de première ionisation,  $I$ , est égal à 5,392 eV pour le lithium.
- l'efficacité de transport,  $C_{\text{ste}}$ , est à définir à chaque expérience. Sa valeur est de l'ordre de 0,5.
- la valeur de  $\Delta H_a$  n'est pas connue pour le collage du lithium sur du carbone. Pour effectuer les estimations d'efficacité totale, nous avons pris une valeur de 3,6 eV, citée dans la thèse de F. Landré-Pellemoine [Lan-01], qui correspond au collage du lithium sur des parois en tantale.
- la valeur de  $t_0$  pour le collage sur des parois en carbone étant inconnue, nous avons pris la valeur correspondant au collage sur des parois en tantale, soit  $2,4 \cdot 10^{-15}$  s.
- la valeur de  $\omega$  étant complètement inconnue pour MONOLITHE, nous avons pris la valeur, obtenue par Kirchner [Kir-90], pour une source à cavité chaude en tungstène à 3000 K, soit une valeur d'environ 0,2.
- le coefficient d'Arrhenius  $D_0$  a été mesuré [Jun-89] pour la diffusion du lithium dans une cible en carbone de POCO Graphite [Poc-99]. Ce carbone, référencé AXM-5Q1, présente une porosité ouverte de 16 % et un taux d'impuretés inférieur à 5 ppm. Le carbone de POCO Graphite utilisé pour la cible de MONOLITHE, référencé ZXF-5Q1, présente également ces deux propriétés. Les deux variétés de carbone étant issues du même fabricant, on peut espérer qu'elles possèdent un coefficient d'Arrhenius  $D_0$  similaire. La valeur de  $\log(D_0)$  mesurée pour le carbone AXM-5Q1 est

de  $4,5 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$ . Nous avons donc utilisé cette valeur pour effectuer les estimations d'efficacité totale.

- le coefficient d'Arrhenius  $E_a$  a été mesuré [Jun-89] pour la diffusion du lithium dans le carbone AXM-5Q1 de POCO Graphite. On peut également espérer que le carbone ZXF-5Q1 et le carbone AXM-5Q1 possèdent un coefficient d'Arrhenius  $E_a$  similaire. La valeur mesurée pour le carbone AXM-5Q1 est de  $52,3 \text{ kCal/mol} \pm 2,3 \text{ kCal/mol}$  (soit  $2,27 \text{ eV} \pm 0,10 \text{ eV}$ ). Nous avons donc utilisé cette valeur pour effectuer les estimations d'efficacité totale.

Les estimations des efficacités de diffusion, effusion, ionisation et totale, pour la production de faisceaux de lithium radioactif, sont établies dans le tableau III-2. Les valeurs des paramètres  $\Delta H_a$ ,  $t_0$ ,  $\omega$ ,  $\log(D_0)$  et  $E_a$  sont purement hypothétiques. Il est donc difficile de connaître la véracité des efficacités calculées. Elles prédisent, tout de même, des efficacités totales très intéressantes pour la production des faisceaux de  $^{11}\text{Li}$ , puisque pour des températures supérieures ou égales à 2000 K, les efficacités totales calculées sont supérieures ou égales à 30 %.

faisceau produit	température de l'ensemble cible + container	efficacité de diffusion	efficacité d'effusion	efficacité d'ionisation	efficacité totale
$^8\text{Li}$ ( $T_{1/2} = 838 \text{ ms}$ )	2000 K	100 %	100 %	89 %	44 %
	2150 K	100 %	100 %	91 %	45 %
$^9\text{Li}$ ( $T_{1/2} = 178,3 \text{ ms}$ )	2000 K	100 %	98 %	89 %	44 %
	2150 K	100 %	99 %	91 %	45 %
$^{11}\text{Li}$ ( $T_{1/2} = 8,5 \text{ ms}$ )	2000 K	100 %	67 %	89 %	30 %
	2150 K	100 %	75 %	91 %	34 %

**Tab. III-2** – Estimation des efficacités de diffusion, effusion, ionisation et totale pour la production de faisceaux de lithium radioactif

#### **III.1.4.4 Estimation de l'efficacité totale de MONOLITHE pour la production des faisceaux de sodium radioactif**

Pour effectuer les estimations pour la production des faisceaux de sodium radioactif, de nouvelles valeurs ont été établies pour certains paramètres :

- le rapport  $g_0/g_+$  est encore égal à 2 pour le sodium.
- le potentiel de première ionisation,  $I$ , est égal à  $5,139 \text{ eV}$  pour le sodium.
- la valeur de  $\Delta H_a$  n'est pas connue pour le collage du sodium sur du carbone. Pour effectuer les estimations d'efficacité totale, nous avons conservé la valeur de  $3,6 \text{ eV}$  utilisée pour le lithium.
- la valeur du coefficient d'Arrhenius  $D_0$ , pour la diffusion du sodium dans la cible en carbone de MONOLITHE, n'est pas connue. Une valeur a été extrapolée en supposant

que l'évolution de  $\log(D_0)$  en fonction du nombre de protons des alcalins a un comportement similaire à l'évolution de  $\log(D_0)$  en fonction du nombre de protons des gaz rares (cf. figure IV-6 de [Lan-01]), c'est-à-dire, une évolution linéaire suivant le nombre de protons. Cette extrapolation est présentée dans le tableau III-3. La valeur de  $\log(D_0)$  extrapolée est de  $7,3 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$ .

- la valeur du coefficient d'Arrhenius  $E_a$  n'est également pas connue. Une valeur a été extrapolée en supposant que l'évolution de  $E_a$  en fonction du nombre de protons des alcalins a un comportement similaire à l'évolution de  $E_a$  en fonction du nombre de protons des gaz rares (cf. figure IV-6 de [Lan-01]), c'est-à-dire, une évolution proportionnelle au nombre de protons. Cette extrapolation est également présentée dans le tableau III-3. La valeur de  $E_a$  extrapolée est de  $192 \text{ kCal/mol}$  (correspondant à  $8,32 \text{ eV}$ ).

		carbone PT2318 de Carbone Lorraine [Car-95]	carbone AXM-5Q1 de POCO Graphite [Poc-99]	carbone ZXF-5Q1 de POCO Graphite [Poc-99] utilisé pour la cible de MONOLITHE
$\log(D_0)$ pour la diffusion du néon		$- 6,4 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$ [Mau-98]		
$\log(D_0)$ pour la diffusion de l'argon		$- 3,6 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$ [Mau-98]		$4,6 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$ [Lan-01]
diffusion du lithium	$\log(D_0)$		$4,5 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$ [Jun-89]	
	$E_a$		$2,27 \text{ eV}$ [Jun-89]	
diffusion du sodium	$\log(D_0)$			extrapolation : $4,5 + (- 3,6 - (- 6,4))$ soit $7,3 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$
	$E_a$			extrapolation : $2,27 / 3 * 11$ soit $8,32 \text{ eV}$

**Tab. III-3** – Estimation, par extrapolation, des valeurs de  $\log(D_0)$  et  $E_a$  correspondant à la diffusion du sodium dans la cible en carbone de MONOLITHE

Les estimations des efficacités de diffusion, effusion, ionisation et totale, pour la production de faisceaux de sodium radioactif, sont établies dans le tableau III-4. Les valeurs des paramètres  $\Delta H_a$ ,  $t_0$ ,  $\omega$ ,  $\log(D_0)$  et  $E_a$  sont, encore une fois, purement hypothétiques. Il est donc toujours difficile de connaître la véracité des efficacités calculées. Elles prédisent, pour les isotopes de sodium présentés, des efficacités de diffusion faibles (inférieures à 10 %) pour des températures de l'ordre de 2000 K. Elles prédisent donc que la diffusion est le facteur limitant pour le sodium. D'après ces prédictions, la zone de saturation de l'efficacité de diffusion (valeur plateau à 100 %) n'est pas encore atteinte pour des températures de l'ordre

de 2000 K – 2150 K. D'après ces prédictions, il faudrait donc monter encore plus haut en température.

faisceau produit	température de l'ensemble cible + container	efficacité de diffusion	efficacité d'effusion	efficacité d'ionisation	efficacité totale
$^{25}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 59,1 \text{ s}$ )	2000 K	7,6 %	100 %	97 %	3,7 %
	2150 K	37 %	100 %	97 %	18 %
$^{26}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 1,072 \text{ s}$ )	2000 K	0,93 %	99 %	97 %	0,45 %
	2150 K	5,6 %	100 %	97 %	2,7 %
$^{27}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 301 \text{ ms}$ )	2000 K	0,43 %	98 %	97 %	0,20 %
	2150 K	2,9 %	99 %	97 %	1,4 %
$^{28}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 30,5 \text{ ms}$ )	2000 K	0,075 %	84 %	97 %	0,031 %
	2150 K	0,83 %	87 %	97 %	0,35 %
$^{29}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 44,9 \text{ ms}$ )	2000 K	0,10 %	89 %	97 %	0,045 %
	2150 K	1,0 %	91 %	97 %	0,46 %

**Tab. III-4** – Estimation des efficacités de diffusion, effusion, ionisation et totale pour la production de faisceaux de sodium radioactif

## **III.2 Premiers résultats expérimentaux de MONOLITHE**

Nous avons effectué le test en ligne de la dernière version de MONOLITHE en Mars 2002. L'expérience a eu lieu sur le banc de tests SIRa (cf. partie I.3.3). Quelques opérations préliminaires ont été nécessaires avant l'expérience.

### **III.2.1 Préparation pré-expérimentale**

#### **III.2.1.1 Dégazage et étalonnage en température**

Cette phase a eu lieu sur un banc de tests auxiliaire prévu pour faire des mesures de température.

Les pièces en carbone de l'ensemble cible-source étant neuves, un dégazage préliminaire de MONOLITHE a été nécessaire. Ce dégazage consiste à monter la température du container et de la cible, en utilisant la résistance chauffante de MONOLITHE, afin d'évacuer les impuretés (dont  $\text{H}_2\text{O}$ ) piégées dans les pièces en carbone. Dans cette phase préliminaire, la température ne doit pas être trop élevée afin de ne pas évaporer inutilement une partie de la cible (on dépasse tout de même les 1500 K).

La température est mesurée à partir d'un pyromètre bichromatique [Lan-95] dont la gamme de mesure en température s'étend de 1000°C à 3000°C. Ce pyromètre donne la température du point le plus chaud, même dans le cas d'une source thermique très hétérogène. Le diamètre de la surface de mesure, à la distance focale (soit 50 cm), est de 6 à 7 mm.

Dans la configuration du montage sur le banc de tests auxiliaire, la seule surface accessible, pour une mesure en température, est la paroi du container sur la face prévue pour l'arrivée du faisceau primaire (cf. figure III-2). Malheureusement, aucune mesure directe sur la cible n'est possible. Nous avons donc réglé la distance du pyromètre afin que la distance focale corresponde à cette paroi du container. Le diamètre accessible de la paroi étant de 29 mm, la tâche de mesure du pyromètre est suffisamment petite (6 à 7 mm) pour effectuer une mesure correcte.

Lorsque la température de l'ensemble cible-source est stabilisée, la puissance rayonnée par la paroi du container est égale à celle absorbée par la paroi du container. Or, la puissance rayonnée par cette paroi est proportionnelle à la loi de Stefan. Cette loi donne la puissance rayonnée, par unité de surface, par un corps noir à la température  $T$ , soit :

$$P_{\text{rayonnée}} = \sigma T^4 \quad (\text{III-5})$$

où  $\sigma$  représente la constante de Stefan-Boltzmann, soit  $5,67 \cdot 10^{-8} \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-4}$ . En considérant, en première approximation, que la puissance absorbée par la paroi du container est directement proportionnelle à la puissance de chauffage, un ajustement, des mesures expérimentales de température, de la forme suivante est possible :

$$P_{\text{chauffage}} = a.T^4 \quad (\text{III-6})$$

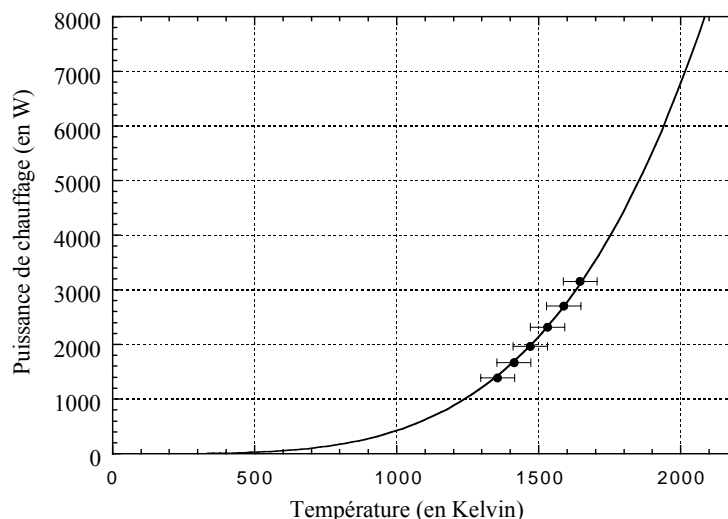
où  $a$  est une constante en  $\text{W.K}^{-4}$ .

Une petite série de mesures de température a été effectuée. Elle est représentée graphiquement dans la figure III-3. La puissance appliquée aux bornes de MONOLITHE, équivalente à une puissance de chauffage via la résistance ohmique de MONOLITHE, est représentée en fonction de la température mesurée, sur la paroi du container en carbone, à partir du pyromètre bichromatique.

Un ajustement des données expérimentales a été obtenu à partir de l'équation III-6. Une valeur de  $4 \cdot 10^{-10} \text{ W.K}^{-4}$  a été déduite pour le paramètre  $a$ .

Des simulations thermiques de MONOLITHE ont été effectuées, par F. Landré-Pellemoine [Lan-01], à partir du code SYSTUS [Sys-1]. La température de la paroi du container, sur la zone de mesure du pyromètre, obtenue par la simulation SYSTUS est représentée dans l'avant-dernière colonne du tableau III-5. La dernière colonne représente la température, de cette même zone, déduite des mesures effectuées à partir du pyromètre.

La comparaison, entre la température simulée et celle mesurée, indique que les deux résultats sont compatibles à 50-100 K près. Nous avons donc utilisé, pendant l'expérience, les simulations SYSTUS pour connaître la distribution en température de l'ensemble MONOLITHE en fonction de la puissance de chauffage.



**Fig. III-3** - Puissance appliquée aux bornes de MONOLITHE (puissance de chauffage via la résistance ohmique de MONOLITHE) en fonction de la température de la paroi du container en carbone (côté prévu pour l'arrivée du faisceau primaire)

puissance de chauffage (en W)	température (en K) de la paroi du container simulée par SYSTUS [Lan-01]	température (en K) de la paroi du container déduite des mesures
4000	1750 - 1800	$1750 \pm 60$
5000	1850 - 1900	$1850 \pm 60$

**Tab. III-5** - Comparaison entre la température, de la paroi du container, simulée avec le code SYSTUS et celle déduite des mesures

### III.2.1.2 Dégazage sur le banc de tests SIRa

Le dégazage des pièces en carbone a été poursuivi sur le banc de tests SIRa. A une puissance de chauffage de 3 kW, correspondant à une température de la paroi du container, sur la zone de mesure du pyromètre, d'environ 1600-1650 K, la présence de  $^{23}\text{Na}$  et de  $^{39}\text{K}$  était incontestable (impuretés résiduelles). Cela veut dire que ces deux éléments sont ionisés par la source à cavité chaude, ce qui confirme le bon fonctionnement de MONOLITHE.

### III.2.2 Mesures des taux de production des faisceaux d'alcalins radioactifs

Le faisceau primaire, utilisé pendant l'expérience, était un faisceau d' $^{36}\text{Ar}$  de 95.A MeV. Ce faisceau n'est pas du tout optimal pour la production du lithium radioactif. Cependant, il permet la production simultanée de lithium et de sodium radioactifs par fragmentation du projectile. Nous avons donc mesuré les taux de production des faisceaux de lithium et de sodium radioactifs obtenus à partir de l'ensemble cible-source MONOLITHE. La



puissance de chauffage utilisée, au cours de ces mesures, était de 5,8 kW, ce qui correspond, d'après les simulations, à une température moyenne de la cible de diffusion d'environ 2150 K (avec une distribution en température étalée sur environ 200 K).

### **III.2.2.1 Détermination des taux de production des noyaux d'alcalins radioactifs arrêtés dans la cible de diffusion**

La densité du carbone utilisé pour la cible de production est de  $1,86 \text{ g/cm}^3$ . Le parcours du faisceau primaire est donc de 4,8 mm. Ce parcours impose une épaisseur minimale, de la cible de production, de 4,8 mm pour pouvoir arrêter le faisceau primaire dans celle-ci. Nous avons donc choisi, par sécurité, en considérant le straggling en énergie, une épaisseur de 6 mm pour la cible de production.

Un bilan des taux de production des noyaux d'alcalins radioactifs, arrêtés dans la cible de diffusion, est effectué dans le tableau III-6. Les taux de production des noyaux d'alcalins radioactifs, dans la cible de production, ont été obtenus par EPAX [Süm-00]. Les incertitudes des taux obtenus dans la cible de diffusion correspondent aux quarts des quantités, des noyaux d'alcalins radioactifs, arrêtées dans les parois du container, les moitiés de ces quantités étant logiquement incluses dans les taux obtenus.

Le faisceau primaire utilisé permet d'obtenir, dans la cible de diffusion, de nombreux isotopes de sodium radioactif et tous les isotopes de lithium radioactif. Les temps de vie de ces isotopes sont très variés, ce qui est très important pour pouvoir déduire des paramètres physiques (coefficients d'Arrhenius, etc.) en effectuant une caractérisation de l'ensemble MONOLITHE, pour la production des faisceaux de lithium et de sodium radioactifs, à partir de la « méthode globale » (cf. partie I.4).

noyau	$^8\text{Li}$	$^9\text{Li}$	$^{11}\text{Li}$	$^{25}\text{Na}$	$^{26}\text{Na}$	$^{27}\text{Na}$	$^{28}\text{Na}$	$^{29}\text{Na}$
$T_{1/2}$ (en s)	0,838	0,1783	0,0085	59,1	1,072	0,301	0,0305	0,0449
taux obtenu (en p/s) dans la cible de diffusion ( $\pm$ incertitude)	$1,9 \cdot 10^7$ $\pm 6 \%$	$2,5 \cdot 10^6$ $\pm 6 \%$	$1,2 \cdot 10^4$ $\pm 6 \%$	$4,2 \cdot 10^7$ $\pm 18 \%$	$8,3 \cdot 10^6$ $\pm 15 \%$	$1,1 \cdot 10^6$ $\pm 13 \%$	$9,9 \cdot 10^4$ $\pm 12 \%$	$6,4 \cdot 10^3$ $\pm 11 \%$

**Tab. III-6** – Taux de production des noyaux d'alcalins radioactifs, arrêtés dans la cible de diffusion, pour 400W d'un faisceau primaire d' $^{36}\text{Ar}$  de 95.A MeV

### **III.2.2.2 Modes de détection utilisés**

Deux modes de détection ont été utilisés au cours de l'expérience. Le premier était basé sur la détection des  $\gamma$  caractéristiques à partir d'un détecteur Germanium. Le second, utilisé en complément ou directement si aucun  $\gamma$  caractéristique n'était émis, était basé sur la détection des électrons, émis lors de la désintégration  $\beta^-$ , à partir d'un détecteur plastique. Un bilan de la détection utilisée, suivant l'élément recherché, est synthétisé dans le tableau III-7.

noyau d'intérêt	détection Germanium		détection plastique
	$\gamma$ caractéristique recherché	rapport d'embranchement	
$^{25}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 59,1$ s)	974,7 keV	14,95 %	non utilisée
$^{26}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 1,072$ s)	1808,7 keV	99 %	utilisée en complément
$^{27}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 301$ ms)	984,6 keV	88 %	utilisée en complément
$^{28}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 30,5$ ms)	1473,3 keV	37 %	utilisée en complément
$^{29}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 44,9$ ms)	2560,2 keV	36 %	utilisée en complément
$^8\text{Li}$ ( $T_{1/2} = 838$ ms)	→ → →	→ → →	mode principal
$^9\text{Li}$ ( $T_{1/2} = 178,3$ ms)	→ → →	→ → →	mode principal
$^{11}\text{Li}$ ( $T_{1/2} = 8,5$ ms)	tous les $\gamma$ caractéristiques ont été recherchés		mode principal

**Tab. III-7** - Mode de détection utilisé en fonction du noyau radioactif alcalin recherché**III.2.2.3 Taux de production des faisceaux de sodium radioactif**

Les mesures expérimentales ont montré que le système d'extraction demande un réglage pointilleux du potentiel de la première électrode (cf. figure III-2 dans la partie III.1.3). En effet, une différence de potentiel trop élevée (quelques centaines de volts), entre l'ensemble cible-source et cette électrode, provoque une divergence du faisceau extrait de l'ensemble cible-source. Un réglage optimal a été obtenu pour une différence de potentiel de seulement 12 V.

Les taux de production moyens mesurés, pour les faisceaux de sodium radioactif, normalisés à 400 W de faisceau primaire, sont regroupés dans le tableau III-8. Aucun faisceau de  $^{28}\text{Na}^+$ , ou de  $^{29}\text{Na}^+$ , n'a été observé en utilisant la détection des  $\gamma$  caractéristiques à partir du détecteur Germanium. Ces faisceaux n'ont également pas été observés à partir de la détection plastique. De plus, pour ce dernier détecteur, le bruit de fond était élevé en raison de la présence de faisceaux d' $^{28}\text{Al}^+$  et d' $^{29}\text{Al}^+$  directement produits par MONOLITHE.

faisceau mesuré	taux de production moyen (en p/s) normalisé à 400 W de faisceau primaire	incertitude du taux mesuré en %
$^{25}\text{Na}^+$ ( $T_{1/2} = 59,1$ s)	$3,3 \cdot 10^6$	10
$^{26}\text{Na}^+$ ( $T_{1/2} = 1,072$ s)	$1,5 \cdot 10^5$	5
$^{27}\text{Na}^+$ ( $T_{1/2} = 301$ ms)	$8,0 \cdot 10^3$	6

**Tab. III-8** - Taux de production moyens mesurés, pour les faisceaux de sodium radioactif, normalisés pour 400 W d'un faisceau primaire d' $^{36}\text{Ar}$  de 95.A MeV. La puissance de chauffage associée est de 5,8 kW, soit une température moyenne, de la cible de diffusion, d'environ 2150 K [Lan-01]

Les efficacités totales expérimentales, correspondant à ces taux de production et déterminées à partir des taux obtenus dans la cible de diffusion (cf. tableau III-6 dans la partie III.2.2.1), sont présentées dans le tableau III-9 et comparées à celles estimées (cf. tableau III-4 dans la partie III.1.4.4).

Les efficacités totales expérimentales obtenues semblent similaires, à un facteur 2 près, aux efficacités totales estimées. Les paramètres estimés, qui définissent les termes d'efficacité dépendant de la demi-vie du noyau radioactif, ne doivent donc pas être très éloignés des valeurs réelles. Cela concerne les coefficients d'Arrhenius  $D_0$  et  $E_a$ , l'enthalpie de collage  $\Delta H_a$  et le paramètre de collage  $t_0$ . Pour les paramètres estimés définissant les termes d'efficacité ne dépendant pas de la demi-vie du noyau radioactif, c'est-à-dire, pour les paramètres  $\omega$  et  $C_{ste}$ , leur valeur engendre une surestimation d'un facteur 2 de l'efficacité totale. La valeur de  $C_{ste}$  choisie ne devant pas être très éloignée de la réalité, l'erreur importante se situe probablement dans l'estimation de la valeur du paramètre  $\omega$ .

Une caractérisation de l'ensemble cible-source MONOLITHE, pour la production des faisceaux de sodium radioactif, va permettre d'obtenir la valeur de chacun de ces paramètres. Les résultats de cette caractérisation sont présentés dans la partie III.3.

faisceau mesuré	efficacité totale estimée (en %)	efficacité totale expérimentale (en %)	incertitude sur l'efficacité totale expérimentale (en %)
$^{25}\text{Na}^+$ ( $T_{1/2} = 59,1$ s)	18	7,9	21
$^{26}\text{Na}^+$ ( $T_{1/2} = 1,072$ s)	2,7	1,8	16
$^{27}\text{Na}^+$ ( $T_{1/2} = 301$ ms)	1,4	0,70	15

**Tab. III-9** – Comparaison des efficacités totales, expérimentales et estimées, dans le cas de la production des faisceaux de sodium radioactif et pour une température moyenne, de la cible de diffusion, d'environ 2150 K

#### **III.2.2.4 Taux de production des faisceaux de lithium radioactif**

Les taux de production moyens mesurés, pour les faisceaux de lithium radioactif, normalisés à 400 W de faisceau primaire, sont regroupés dans le tableau III-10. Aucun faisceau de  $^{11}\text{Li}^+$  n'a été observé, que ce soit à partir du détecteur Germanium ou à partir du détecteur plastique.

Les efficacités totales expérimentales, déterminées par le rapport entre ces taux de production et les taux obtenus dans la cible de diffusion (cf. tableau III-6 dans la partie III.2.2.1), sont présentées dans le tableau III-11 et comparées aux efficacités totales estimées (cf. tableau III-2 dans la partie III.1.4.3).

Les efficacités totales expérimentales obtenues n'ont absolument rien de commun avec celles estimées. Les valeurs estimées des coefficients d'Arrhenius  $D_0$  et  $E_a$  sont issues de mesures expérimentales dans le carbone AXM-5Q1 de POCO Graphite (cf. partie III.1.4.3). L'erreur ne vient donc pas forcément de ces deux paramètres. Les parois étant de même nature que précédemment (cf. III.2.2.3), la valeur du paramètre  $t_0$  n'est pas concernée non

plus. L'erreur importante se situe donc probablement dans l'estimation de la valeur des paramètres  $\Delta H_a$  et  $\omega$ .

Une caractérisation de l'ensemble cible-source MONOLITHE, pour la production des faisceaux de lithium radioactif, va permettre de connaître la valeur de chacun de ces paramètres. Les résultats de cette caractérisation sont présentés dans la partie III.3 de ce chapitre.

faisceau mesuré	taux de production moyen (en p/s) normalisé à 400 W de faisceau primaire	incertitude du taux mesuré en %
$^8\text{Li}^+$ ( $T_{1/2} = 838$ ms)	$1,6 \cdot 10^5$	11
$^9\text{Li}^+$ ( $T_{1/2} = 178,3$ ms)	$2,7 \cdot 10^3$	12

**Tab. III-10** - Taux de production moyens mesurés, pour les faisceaux de lithium radioactif, normalisés pour 400 W d'un faisceau primaire d' $^{36}\text{Ar}$  de 95.A MeV. La puissance de chauffage associée est de 5,8 kW, soit une température moyenne, de la cible de diffusion, d'environ 2150 K [Lan-01]

faisceau mesuré	efficacité totale estimée (en %)	efficacité totale expérimentale (en %)	incertitude sur l'efficacité totale expérimentale (en %)
$^8\text{Li}^+$ ( $T_{1/2} = 838$ ms)	45	0,83	13
$^9\text{Li}^+$ ( $T_{1/2} = 178,3$ ms)	45	0,11	14

**Tab. III-11** – Comparaison des efficacités totales, expérimentales et estimées, dans le cas de la production des faisceaux de lithium radioactif et pour une température moyenne, de la cible de diffusion, d'environ 2150 K

### **III.3 Caractérisation de l'ensemble cible-source MONOLITHE pour la production des faisceaux d'alcalins radioactifs**

Pour cette caractérisation, nous avons utilisé la nouvelle méthodologie présentée dans la quatrième partie du chapitre I, c'est-à-dire, la « méthode globale ». Nous avons vu que cette méthode permet de déterminer la valeur des paramètres physiques (coefficients d'Arrhenius, etc.), à partir de données expérimentales d'efficacité totale pour différents isotopes d'un élément et différentes températures de cible.

Dans le cas particulier de cette expérience, les données expérimentales d'efficacité totale sont déduites des taux de production mesurés, par la relation suivante :

$$\frac{\tau_{\text{disponible}}}{\tau_{\text{produit}}} = \xi_{\text{totale}} \quad (\text{III-7})$$

où

- $\xi_{\text{totale}}$  représente l'efficacité totale définie par l'équation III-4 (cf. partie III.1.4.1).
- $\tau_{\text{produit}}$ , le taux de production, de l'alcalin radioactif considéré, arrêté dans la cible de diffusion (cf. tableau III-6 dans la partie III.2.2.1).
- $\tau_{\text{disponible}}$ , le taux de production mesuré pour cet alcalin radioactif.

Des mesures de taux de production des faisceaux de  $^{25}\text{Na}^+$ ,  $^{26}\text{Na}^+$ ,  $^{27}\text{Na}^+$ ,  $^8\text{Li}^+$  et  $^9\text{Li}^+$  ont donc été effectuées pour différentes températures de la cible de diffusion. Ces mesures nous ont permis d'appliquer la « méthode globale » dans le but de caractériser l'ensemble cible-source MONOLITHE pour la production des faisceaux de lithium et de sodium radioactifs.

### **III.3.1 Caractérisation de MONOLITHE pour la production des faisceaux de sodium radioactif**

#### **III.3.1.1 Données expérimentales d'efficacité totale**

Les taux de production des faisceaux de  $^{25}\text{Na}^+$ ,  $^{26}\text{Na}^+$  et  $^{27}\text{Na}^+$ , mesurés pour différentes puissances de chauffage, sont présentés respectivement dans les tableaux III-12, III-13 et III-14.

faisceau mesuré	taux de production mesuré (en p/s) normalisé à 400W de faisceau primaire	incertitude du taux mesuré en %	puissance de chauffage utilisée
$^{25}\text{Na}^+$	$3,9 \cdot 10^6$	10	5,93 kW
$^{25}\text{Na}^+$	$3,2 \cdot 10^6$	10	5,64 kW
$^{25}\text{Na}^+$	$2,2 \cdot 10^6$	10	5,19 kW
$^{25}\text{Na}^+$	$1,5 \cdot 10^6$	11	4,87 kW
$^{25}\text{Na}^+$	$9,8 \cdot 10^5$	10	4,28 kW

**Tab. III-12** – Taux de production des faisceaux de  $^{25}\text{Na}^+$  ( $T_{1/2} = 59,1$  s) pour différentes puissances de chauffage

faisceau mesuré	taux de production mesuré (en p/s) normalisé à 400W de faisceau primaire	incertitude du taux mesuré en %	puissance de chauffage utilisée
$^{26}\text{Na}^+$	$1,9 \cdot 10^5$	5	5,78 kW
$^{26}\text{Na}^+$	$1,8 \cdot 10^5$	5	5,64 kW
$^{26}\text{Na}^+$	$1,1 \cdot 10^5$	5	5,17 kW
$^{26}\text{Na}^+$	$8,0 \cdot 10^4$	5	4,87 kW
$^{26}\text{Na}^+$	$4,0 \cdot 10^4$	5	4,28 kW

**Tab. III-13** – Taux de production des faisceaux de  $^{26}\text{Na}^+$  ( $T_{1/2} = 1,072$  s) pour différentes puissances de chauffage

faisceau mesuré	taux de production mesuré (en p/s) normalisé à 400W de faisceau primaire	incertitude du taux mesuré en %	puissance de chauffage utilisée
$^{27}\text{Na}^+$	$9,7 \cdot 10^3$	6	5,78 kW
$^{27}\text{Na}^+$	$8,3 \cdot 10^3$	6	5,64 kW
$^{27}\text{Na}^+$	$5,4 \cdot 10^3$	6	5,17 kW
$^{27}\text{Na}^+$	$3,6 \cdot 10^3$	6	4,87 kW
$^{27}\text{Na}^+$	$1,8 \cdot 10^3$	8	4,28 kW

**Tab. III-14** – Taux de production des faisceaux de  $^{27}\text{Na}^+$  ( $T_{1/2} = 301$  ms) pour différentes puissances de chauffage

Les données expérimentales d'efficacité totale, nécessaires pour appliquer la « méthode globale », sont déduites des taux de production mesurés en effectuant le rapport de ces taux sur les taux de production obtenus dans la cible de diffusion (cf. équation III-7 au début de la partie III.3). Les résultats obtenus pour les faisceaux de  $^{25}\text{Na}^+$ ,  $^{26}\text{Na}^+$  et  $^{27}\text{Na}^+$  sont présentés respectivement dans les tableaux III-15, III-16 et III-17.

faisceau mesuré	efficacité totale déduite en %	incertitude sur l'efficacité totale déduite en %	température moyenne de la cible de diffusion
$^{25}\text{Na}^+$	9,3	21	2164 K
$^{25}\text{Na}^+$	7,6	21	2137 K
$^{25}\text{Na}^+$	5,2	21	2093 K
$^{25}\text{Na}^+$	3,6	21	2060 K
$^{25}\text{Na}^+$	2,3	21	1994 K

**Tab. III-15** – Données expérimentales d'efficacité totale déduites pour les faisceaux de  $^{25}\text{Na}^+$  ( $T_{1/2} = 59,1$  s) pour différentes températures moyennes de la cible de diffusion

faisceau mesuré	efficacité totale déduite en %	incertitude sur l'efficacité totale déduite en %	température moyenne de la cible de diffusion
$^{26}\text{Na}^+$	2,3	16	2150 K
$^{26}\text{Na}^+$	2,1	16	2137 K
$^{26}\text{Na}^+$	1,4	16	2091 K
$^{26}\text{Na}^+$	0,97	16	2060 K
$^{26}\text{Na}^+$	0,49	16	1994 K

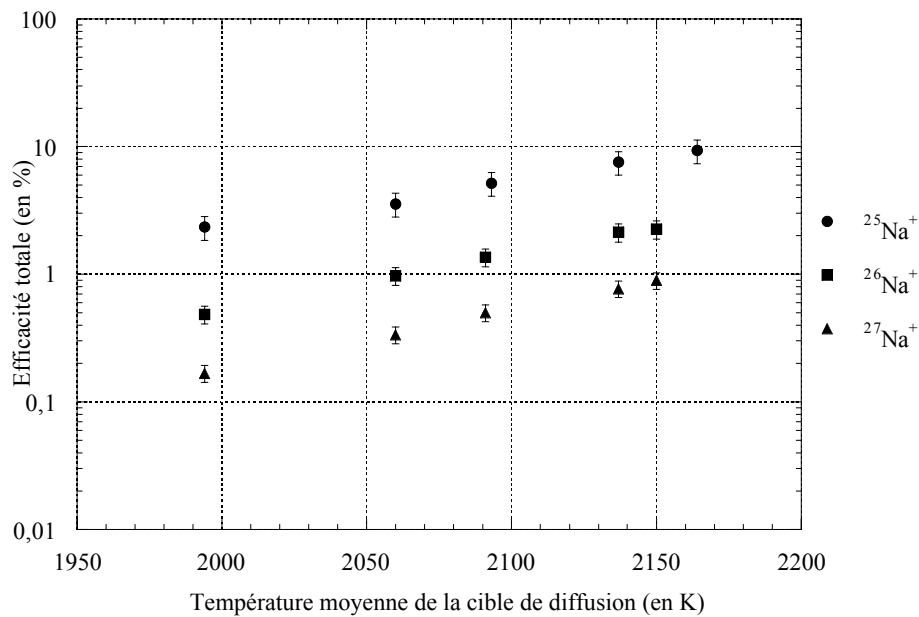
**Tab. III-16** – Données expérimentales d'efficacité totale déduites pour les faisceaux de  $^{26}\text{Na}^+$  ( $T_{1/2} = 1,072$  s) pour différentes températures moyennes de la cible de diffusion

Les données expérimentales d'efficacité totale, pour les faisceaux de  $^{25}\text{Na}^+$ ,  $^{26}\text{Na}^+$  et  $^{27}\text{Na}^+$ , sont exprimées en fonction de la température moyenne de la cible de diffusion dans la

figure III-4. L'ajustement de l'intégralité de ces points, à partir de l'équation d'efficacité totale de l'ensemble cible-source MONOLITHE (cf. équation III-4 dans la partie III.1.4.1), va permettre d'obtenir les valeurs inconnues des paramètres  $D_0$ ,  $E_a$ ,  $t_0$ ,  $\Delta H_a$  et  $\omega$ .

ion mesuré	efficacité totale déduite en %	incertitude sur l'efficacité totale déduite en %	température moyenne de la cible de diffusion
$^{27}\text{Na}^+$	0,90	15	2150 K
$^{27}\text{Na}^+$	0,77	15	2137 K
$^{27}\text{Na}^+$	0,50	15	2091 K
$^{27}\text{Na}^+$	0,34	15	2060 K
$^{27}\text{Na}^+$	0,17	15	1994 K

**Tab. III-17** – Données expérimentales d'efficacité totale déduites pour les faisceaux de  $^{27}\text{Na}^+$  ( $T_{1/2} = 301$  ms) pour différentes températures moyennes de la cible de diffusion



**Fig. III-4** – Efficacités totales de production des faisceaux de  $^{25}\text{Na}^+$ ,  $^{26}\text{Na}^+$  et  $^{27}\text{Na}^+$  en fonction de la température moyenne de la cible de diffusion

### III.3.1.2 Choix des paramètres

Les paramètres caractéristiques qui ne sont pas connus, pour la production des faisceaux de sodium radioactif à partir de l'ensemble cible-source MONOLITHE, sont les paramètres de diffusion  $D_0$  et  $E_a$ , les paramètres d'effusion  $t_0$  et  $\Delta H_a$  et le paramètre d'ionisation  $\omega$ . Nous n'avons pas mesuré l'efficacité de transport pendant l'expérience (aucune fuite calibrée n'a été adaptée sur le système MONOLITHE). Nous savons seulement qu'elle est de l'ordre de 0,5 (valeur typique habituelle mesurée pour les ensembles cible\_source testés sur le banc de tests SIRa). Un paramètre supplémentaire a donc été choisi,

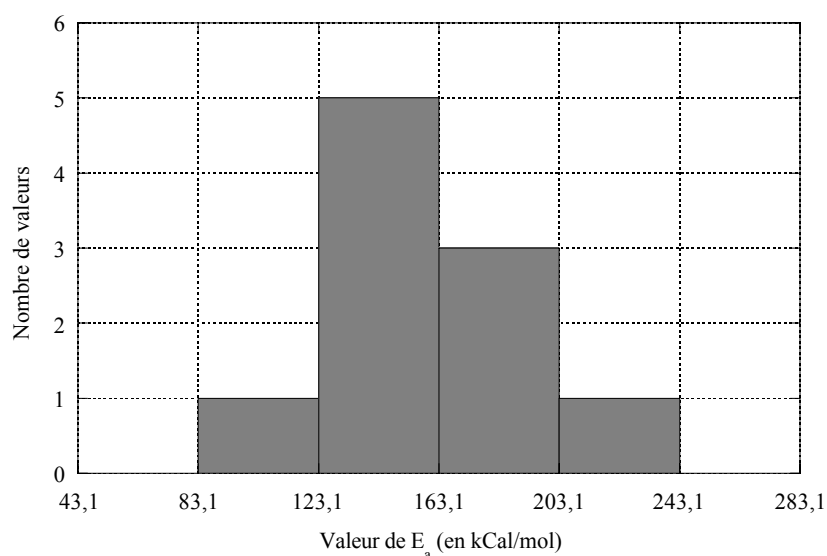
c'est-à-dire, Cste (cf. équation III-4 dans la partie III.1.4.1) qui représente l'efficacité de transport.

Un premier essai de la « méthode globale » (cf. partie I.4.3) a été effectué en utilisant les données expérimentales d'efficacité totale pour la production des faisceaux de sodium radioactif (cf. tableaux III-15, III-16 et III-17) et en choisissant la totalité des 6 paramètres ( $\log(D_0)$ ,  $E_a$ ,  $t_0$ ,  $\Delta H_a$ ,  $\omega$  et Cste) comme variables. Cette première application indique une insensibilité au paramètre  $t_0$  : ce paramètre reste figé sur sa valeur initiale d'injection. Ce comportement avait déjà été observé lors de l'étude de la convergence de la méthode (cf. partie I.4.5.2). Une solution simple est de fixer le paramètre  $t_0$  et de laisser libres les autres paramètres.

Nous avons donc appliqué à nouveau la « méthode globale » en choisissant, cette fois-ci, comme paramètres variables  $\log(D_0)$ ,  $E_a$ ,  $\Delta H_a$ ,  $\omega$  et Cste et en faisant varier « manuellement », en dehors du code,  $t_0$  sur l'ensemble de ses valeurs physiques (cf. partie III.1.4.2), c'est-à-dire, sur l'intervalle  $[1,0 \cdot 10^{-15} \text{ s} - 1,0 \cdot 10^{-13} \text{ s}]$ .

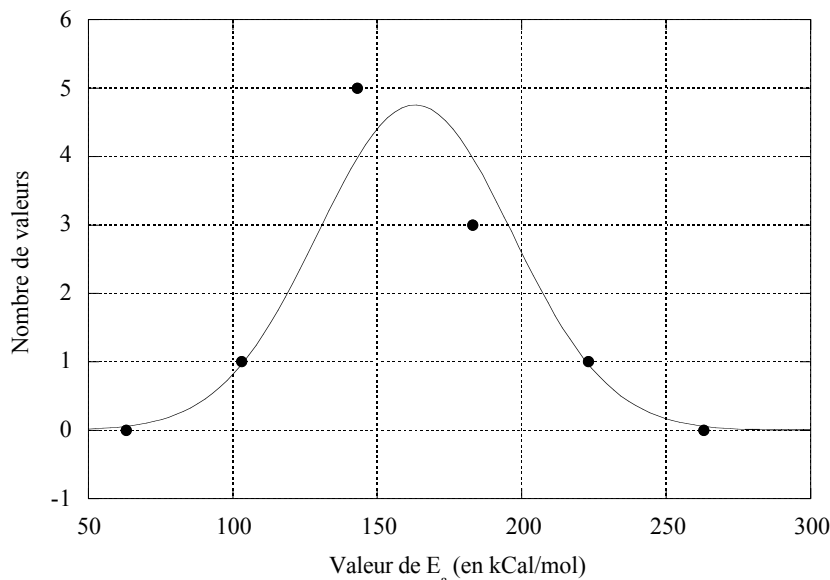
### **III.3.1.3 Obtention des paramètres pour $t_0$ égal à $1,0 \cdot 10^{-15} \text{ s}$**

La valeur obtenue pour chacun des paramètres est présentée dans le tableau III-18. Chaque écart-type a été déterminé par la méthode de Monté-Carlo (cf. partie I.4.4.2), sauf pour le paramètre  $\omega$  qui est bloqué, dans la recherche du  $\chi^2$  minimum, par sa limite physique à  $1,25 \cdot 10^{-3}$  ( $N = \omega \cdot \chi = 1$ ). Dans le cadre de cette méthode, la distribution gaussienne des valeurs obtenue pour le paramètre  $E_a$ , à partir de 10 tirages aléatoires de données d'efficacité totale suivant une distribution gaussienne, est représentée dans la figure III-5. La courbe gaussienne de répartition des valeurs pour le paramètre  $E_a$ , déduite de la distribution des valeurs obtenue par la méthode de Monté-Carlo, est représentée dans la figure III-6. A partir de cette courbe, un écart-type de 34 kCal/mol (1,5 eV) a été déduit pour  $E_a$ .



**Fig. III-5** – Distribution gaussienne des valeurs obtenue pour le paramètre  $E_a$  à partir de la méthode de Monté-Carlo





**Fig. III-6** – Courbe gaussienne de répartition des valeurs pour le paramètre  $E_a$  obtenue à partir de la distribution des valeurs (points). L'écart-type pour  $E_a$ , déduit de cette courbe, est de 34 kCal/mol (1,5 eV)

$\log(D_0)$ en $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	$E_a$ en eV	$\Delta H_a$ en eV	$\omega$	Cste	$\chi^2_{\text{réduit}}$
$5,7 \pm 3,2$	$7,1 \pm 1,5$	$4,5 \pm 0,2$	$1,25 \cdot 10^{-3}$	$0,42 \pm 0,12$	1,49

**Tab. III-18** – Valeurs obtenues pour les paramètres  $\log(D_0)$ ,  $E_a$ ,  $\Delta H_a$ ,  $\omega$  et Cste en prenant  $t_0$  égal à  $1,0 \cdot 10^{-15}$  s

La valeur de  $\chi^2_{\text{réduit}}$  est acceptable du point de vue de la fiabilité des paramètres obtenus. L'écart-type déduit pour le paramètre  $\log(D_0)$  est très élevé (de l'ordre de 50 %). Une observation intéressante concerne le paramètre  $\omega$ . En effet, la méthode converge vers une solution indiquant que la cavité chaude de MONOLITHE se comporte comme une source à ionisation de surface, car  $N = \omega \cdot \chi = 1$  (cf. figure III-1 dans la partie III.1.2.2) pour la production des faisceaux de sodium radioactif. Nous interprétons ce résultat comme conséquence du fait que le potentiel de première ionisation du sodium (5,139 eV) est plus élevé que le travail de sortie du carbone (5,0 eV). La probabilité de capture d'un électron n'est donc pas du tout négligeable pour le sodium. Cela peut expliquer le mauvais comportement de la source. Dans ces conditions, l'efficacité d'ionisation du sodium est de 18 % à 2000 K.

#### **III.3.1.4 Obtention des paramètres pour $t_0$ égal à $1,0 \cdot 10^{-13}$ s**

La valeur obtenue pour chacun des paramètres est présentée dans le tableau III-19. La valeur de  $\chi^2_{\text{réduit}}$  est acceptable du point de vue de la fiabilité des paramètres obtenus. Comme

précédemment (cf. partie III.3.1.3), la même conclusion peut être faite concernant le comportement de la source à cavité chaude de MONOLITHE : elle se comporte comme une source à ionisation de surface ( $N = \omega \chi = 1$ ).  $\chi^2_{\text{réduit}}$  décroît légèrement sur l'intervalle des valeurs physiques pour  $t_0$  (cf. partie III.1.4.2), soit l'intervalle  $[1,0 \cdot 10^{-15} \text{ s} - 1,0 \cdot 10^{-13} \text{ s}]$ . Aucun minimum local de  $\chi^2_{\text{réduit}}$  n'est présent à l'intérieur de cet intervalle. Nous n'avons pas dépassé les valeurs limites de cet intervalle, car elles représentent les limites physiques pour  $t_0$ . Nous ne pouvons donc pas déduire la valeur de  $t_0$  à partir des données d'efficacité totale du sodium. Sur l'intervalle des valeurs probables pour  $t_0$ , les paramètres  $\log(D_0)$ ,  $E_a$ ,  $\Delta H_a$ ,  $\omega$  et Cste ont le comportement suivant :

- $\log(D_0)$  croît légèrement de  $5,7 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  à  $5,9 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ .
- $E_a$  est constant à 7,1 eV.
- $\Delta H_a$  décroît fortement de 4,5 eV à 3,7 eV.
- $\omega$  est constant à  $1,25 \cdot 10^{-3}$ .
- Cste décroît très légèrement de 0,42 à 0,40.

$\log(D_0)$ en $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	$E_a$ en eV	$\Delta H_a$ en eV	$\omega$	Cste	$\chi^2_{\text{réduit}}$
$5,9 \pm 2,5$	$7,1 \pm 1,1$	$3,7 \pm 0,2$	$1,25 \cdot 10^{-3}$	$0,40 \pm 0,13$	1,43

**Tab. III-19** – Valeurs obtenues pour les paramètres  $\log(D_0)$ ,  $E_a$ ,  $\Delta H_a$ ,  $\omega$  et Cste en prenant  $t_0$  égal à  $1,0 \cdot 10^{-13} \text{ s}$ . L'écart-type de chacun des paramètres a été déterminé par la méthode de Monté-Carlo (cf. partie I.4.4.2)

### III.3.1.5 Bilan des paramètres obtenus

Le bilan des valeurs des paramètres, effectué sur l'intervalle des valeurs probables pour  $t_0$ , est présenté dans le tableau III-20. La valeur retenue, pour chacun des paramètres, est la valeur moyenne des deux valeurs obtenues pour les valeurs limites de  $t_0$ .

paramètre	$\log(D_0)$ en $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	$E_a$ en eV	$\Delta H_a$ en eV	$\omega$	Cste
valeur	5,8	7,1	4,1	$1,25 \cdot 10^{-3}$	0,41
écart-type déduit par la méthode de Monté-Carlo	2,9	1,3	0,2	—	0,13
écart-type sur l'intervalle des valeurs probables pour $t_0$	0,1	0,03	0,4	—	0,01
écart-type total	2,9	1,3	0,4	—	0,13

**Tab. III-20** – Valeur finale pour chacun des paramètres et écarts-types associés

Mis à part le paramètre  $\Delta H_a$ , tous les paramètres varient peu sur l'intervalle des valeurs probables pour  $t_0$ . Il en résulte que l'écart-type final de ces paramètres est essentiellement provoqué par la propagation des erreurs dans la méthode, cette propagation étant déduite par la méthode de Monté-Carlo.

La comparaison, pour chacun des paramètres, entre la valeur estimée (cf. partie III.1.4.4) et celle obtenue à partir des mesures expérimentales est présentée dans le tableau III-21. A l'exception du paramètre  $\omega$ , les valeurs des paramètres obtenues ne sont pas radicalement différentes de celles qui ont pu être estimées. Nous avons déjà pressenti cela lors de la comparaison des efficacités totales estimées et mesurées (cf. partie III.2.2.3).

La différence la plus importante à souligner concerne le paramètre  $\omega$ , puisque la valeur obtenue permet de comprendre que la source à cavité chaude de MONOLITHE se comporte comme une source à ionisation de surface ( $N = \omega \cdot \chi = 1$  au lieu de  $N = \omega \cdot \chi \gg 1$ ). La valeur d'enthalpie d'adsorption  $\Delta H_a$  obtenue indique que le sodium est un élément dont le temps de collage est supérieur au temps de vol pour des températures de l'ordre de 2000 K (cf. tableau III-22).

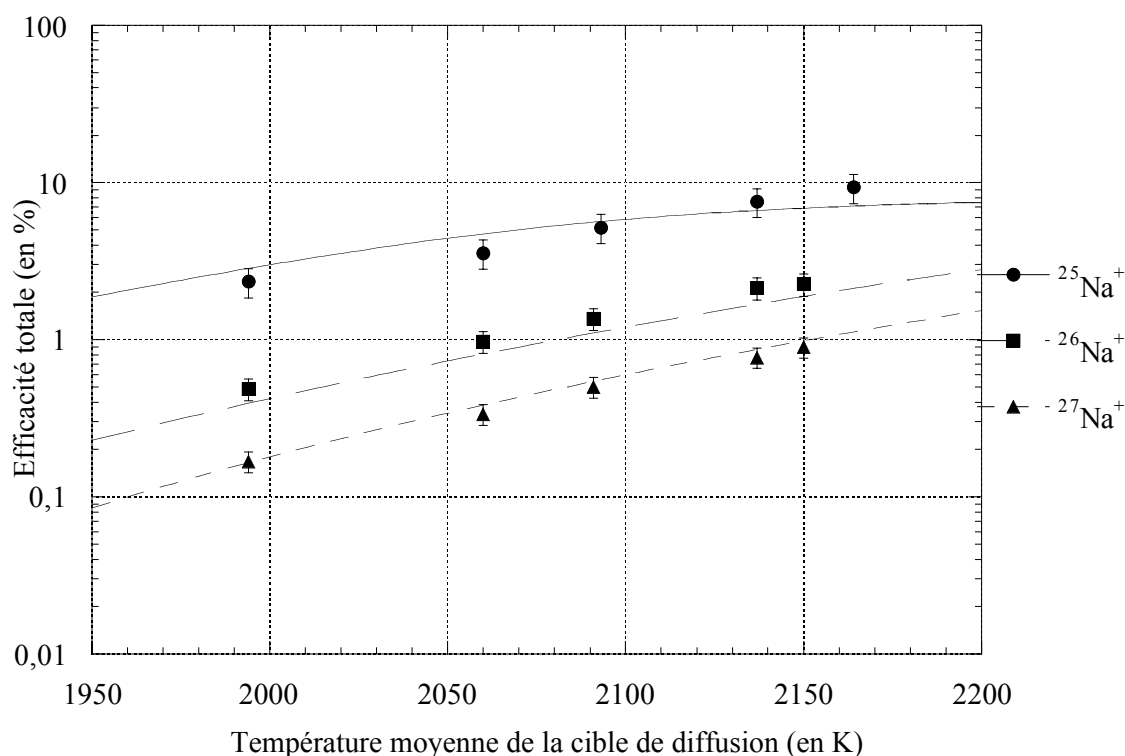
paramètre	$\log(D_0)$ en $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	$E_a$ en eV	$\Delta H_a$ en eV	$\omega$	Cste
valeur estimée	7,3	8,3	3,6	0,2	0,5
valeur déduite des mesures expérimentales	5,8 $\pm 2,9$	7,1 $\pm 1,3$	4,1 $\pm 0,4$	$1,25 \cdot 10^{-3}$	0,41 $\pm 0,13$

**Tab. III-21** – Comparaison, pour chacun des paramètres, entre la valeur estimée et celle déduite des mesures expérimentales

isotope	T (en K)	$\chi \cdot \tau_{\text{vol}}$ (en ms)	$\chi \cdot \tau_{\text{collage}}$ (en ms)
$^{25}\text{Na}$	2000 K	5,7	170
$^{25}\text{Na}$	2150 K	5,5	33
$^{26}\text{Na}$	2000 K	5,8	170
$^{26}\text{Na}$	2150 K	5,6	33
$^{27}\text{Na}$	2000 K	5,9	170
$^{27}\text{Na}$	2150 K	5,7	33

**Tab. III-22** – Comparaison, pour différents isotopes du sodium et pour différentes températures, entre le temps de vol total et le temps de collage total pour  $t_0$  égal à  $1 \cdot 10^{-14}$  s

Les courbes d'efficacité totale de production des faisceaux de  $^{25}\text{Na}^+$ ,  $^{26}\text{Na}^+$  et  $^{27}\text{Na}^+$ , déduites des paramètres obtenus à partir des mesures expérimentales, sont représentées en fonction de la température moyenne de la cible de diffusion dans la figure III-7. Les courbes ont été obtenues en prenant  $t_0$  égal à  $1,0 \cdot 10^{-14}$  s.



**Fig. III-7** – Courbes d'efficacité totale de production des faisceaux de  $^{25}\text{Na}^+$ ,  $^{26}\text{Na}^+$  et  $^{27}\text{Na}^+$  en fonction de la température moyenne de la cible de diffusion

Les valeurs moyennes des efficacités de diffusion, effusion, ionisation et totale pour la production des faisceaux de  $^{25}\text{Na}^+$ ,  $^{26}\text{Na}^+$ ,  $^{27}\text{Na}^+$ ,  $^{28}\text{Na}^+$  et  $^{29}\text{Na}^+$ , déduites des paramètres obtenus, sont présentées dans le tableau III-23.

faisceau produit	température de l'ensemble cible + container	efficacité de diffusion moyenne	efficacité d'effusion moyenne	efficacité d'ionisation moyenne	efficacité totale moyenne
$^{25}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 59,1 \text{ s}$ )	2000 K	40 %	100 %	18 %	3,0 %
	2150 K	88 %	100 %	19 %	6,9 %
$^{26}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 1,072 \text{ s}$ )	2000 K	6,1 %	90 %	18 %	0,41 %
	2150 K	24 %	98 %	19 %	1,9 %
$^{27}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 301 \text{ ms}$ )	2000 K	3,2 %	71 %	18 %	0,17 %
	2150 K	14 %	92 %	19 %	0,97 %
$^{28}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 30,5 \text{ ms}$ )	2000 K	0,93 %	20 %	18 %	0,014 %
	2150 K	4,3 %	54 %	19 %	0,18 %
$^{29}\text{Na}$ ( $T_{1/2} = 44,9 \text{ ms}$ )	2000 K	1,2 %	27 %	18 %	0,023 %
	2150 K	5,3 %	63 %	19 %	0,26 %

**Tab. III-23** – Efficacités moyennes déduites de diffusion, effusion, ionisation et totale pour la production des faisceaux de  $^{25}\text{Na}^+$ ,  $^{26}\text{Na}^+$ ,  $^{27}\text{Na}^+$ ,  $^{28}\text{Na}^+$  et  $^{29}\text{Na}^+$

La comparaison des efficacités moyennes nous indique que la diffusion du sodium dans la cible est le facteur limitant en efficacité pour les isotopes à court temps de vie, tandis que c'est l'ionisation pour les isotopes à long temps de vie. L'effusion, en tout cas, n'est pas un facteur limitant.

### **III.3.2 Caractérisation de MONOLITHE pour la production des faisceaux de lithium radioactif**

#### **III.3.2.1 Données expérimentales d'efficacité totale**

Les taux de production des faisceaux de  $^8\text{Li}^+$  et  $^9\text{Li}^+$ , mesurés pour différentes puissances de chauffage, sont présentés respectivement dans les tableaux III-24 et III-25.

faisceau mesuré	taux de production mesuré (en p/s) normalisé à 400W de faisceau primaire	incertitude du taux mesuré en %	puissance de chauffage utilisée
$^8\text{Li}^+$	$2,2 \cdot 10^5$	11	5,87 kW
$^8\text{Li}^+$	$1,5 \cdot 10^5$	11	5,64 kW
$^8\text{Li}^+$	$6,1 \cdot 10^4$	11	5,17 kW
$^8\text{Li}^+$	$3,7 \cdot 10^4$	11	4,88 kW
$^8\text{Li}^+$	$1,0 \cdot 10^4$	12	4,28 kW

**Tab. III-24** – Taux de production des faisceaux de  $^8\text{Li}^+$  ( $T_{1/2} = 838$  ms) pour différentes puissances de chauffage

faisceau mesuré	taux de production mesuré (en p/s) normalisé à 400W de faisceau primaire	incertitude du taux mesuré en %	puissance de chauffage utilisée
$^9\text{Li}^+$	$3,5 \cdot 10^3$	14	5,92 kW
$^9\text{Li}^+$	$2,4 \cdot 10^3$	13	5,65 kW
$^9\text{Li}^+$	$9,8 \cdot 10^2$	19	5,23 kW
$^9\text{Li}^+$	$4,0 \cdot 10^2$	29	4,87 kW

**Tab. III-25** – Taux de production des faisceaux de  $^9\text{Li}^+$  ( $T_{1/2} = 178,3$  ms) pour différentes puissances de chauffage

Les efficacités totales obtenues pour la production des faisceaux de  $^8\text{Li}^+$  et  $^9\text{Li}^+$ , déduites des taux de production mesurés en effectuant le rapport de ces taux sur les taux de production obtenus dans la cible de diffusion (cf. équation III-7 au début de la partie III.3), sont présentées respectivement dans les tableaux III-26 et III-27.

Les données expérimentales d'efficacité totale, pour les faisceaux de  $^8\text{Li}^+$  et  $^9\text{Li}^+$ , sont exprimées en fonction de la température moyenne de la cible de diffusion dans la figure III-8. L'ajustement de l'intégralité de ces points, à partir de l'équation d'efficacité totale de

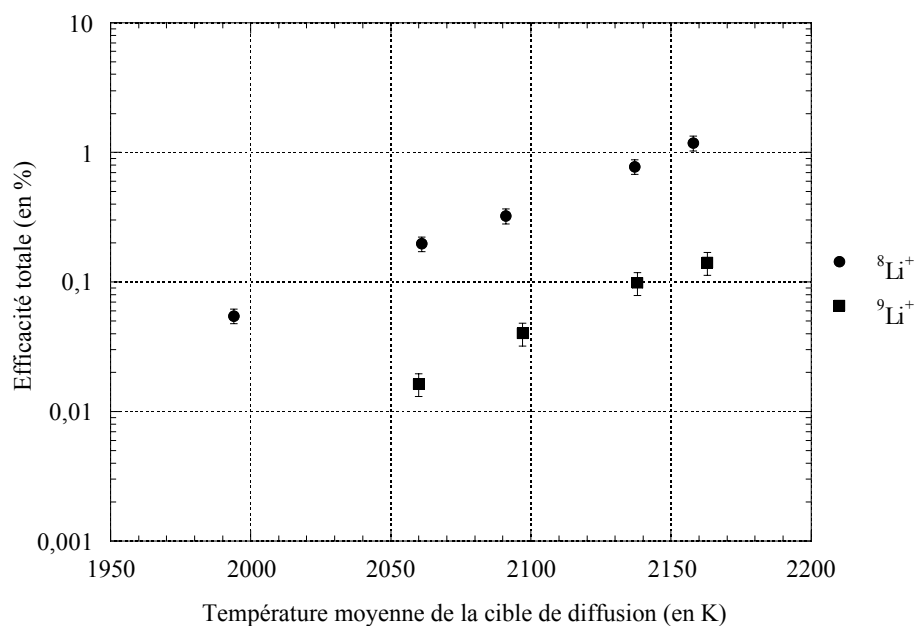
l'ensemble cible-source MONOLITHE (cf. équation III-4 dans la partie III.1.4.1), permet de caractériser cet ensemble cible-source pour la production des faisceaux de lithium radioactif.

ion mesuré	efficacité totale déduite en %	incertitude sur l'efficacité totale déduite en %	température moyenne de la cible de diffusion
$^8\text{Li}^+$	1,2	13	2158 K
$^8\text{Li}^+$	0,78	13	2137 K
$^8\text{Li}^+$	0,32	13	2091 K
$^8\text{Li}^+$	0,20	13	2061 K
$^8\text{Li}^+$	0,055	13	1994 K

**Tab. III-26** – Efficacités totales déduites pour les faisceaux de  $^8\text{Li}^+$  ( $T_{1/2} = 838$  ms) pour différentes températures moyennes de la cible de diffusion

ion mesuré	efficacité totale déduite en %	incertitude sur l'efficacité totale déduite en %	température moyenne de la cible de diffusion
$^9\text{Li}^+$	0,14	15	2163 K
$^9\text{Li}^+$	0,099	15	2138 K
$^9\text{Li}^+$	0,040	20	2097 K
$^9\text{Li}^+$	0,016	30	2060 K

**Tab. III-27** – Efficacités totales déduites pour les faisceaux de  $^9\text{Li}^+$  ( $T_{1/2} = 178,3$  ms) pour différentes températures moyennes de la cible de diffusion



**Fig. III-8** – Efficacités totales de production des faisceaux de  $^8\text{Li}^+$  et  $^9\text{Li}^+$  en fonction de la température moyenne de la cible de diffusion

### **III.3.2.2 Choix des paramètres**

Les paramètres caractéristiques qui ne sont pas connus, pour la production des faisceaux de lithium radioactif à partir de l'ensemble cible-source MONOLITHE, sont les paramètres de diffusion  $D_0$  et  $E_a$ , les paramètres d'effusion  $t_0$  et  $\Delta H_a$  et le paramètre d'ionisation  $\omega$ . A ces paramètres s'ajoute le paramètre Cste représentant l'efficacité de transport.

Une première application de la « méthode globale » (cf. partie I.4.3) a été effectuée en utilisant les données expérimentales d'efficacité totale pour la production des faisceaux de lithium radioactif (cf. tableaux III-26 et III-27) et en choisissant la totalité des 6 paramètres ( $\log(D_0)$ ,  $E_a$ ,  $t_0$ ,  $\Delta H_a$ ,  $\omega$  et Cste) comme variables. Aucune convergence n'a été obtenue, car le nombre de points expérimentaux est insuffisant en comparaison avec le nombre de paramètres variables (9 points expérimentaux, correspondant à deux isotopes, pour 6 paramètres variables). Il faut donc fixer les paramètres qui peuvent raisonnablement l'être.

Le paramètre Cste, qui représente l'efficacité de transport, est considéré approximativement constant, quelle que soit la nature du faisceau étudié. Ce paramètre a été déterminé pendant la caractérisation pour la production des faisceaux de sodium radioactif et vaut  $0,41 \pm 0,13$ . Nous avons vu également, pendant la caractérisation de MONOLITHE pour la production des faisceaux de sodium radioactif, que la source à cavité chaude de MONOLITHE se comporte comme une source à ionisation de surface pour la production des faisceaux de sodium. Or, le potentiel de première ionisation du lithium est encore plus élevé que celui du sodium (5,39 eV au lieu de 5,14 eV). Par conséquent, la source se comporte exactement de la même manière pour la production des faisceaux de lithium radioactif. La valeur du paramètre d'ionisation  $\omega$  est donc de  $1,25 \cdot 10^{-3}$  ( $N = \omega \cdot \chi = 1$ ).

Une seconde application de la « méthode globale » a donc été effectuée en choisissant les paramètres  $\log(D_0)$ ,  $E_a$ ,  $t_0$  et  $\Delta H_a$  comme variables et en fixant Cste à 0,41 et  $\omega$  à  $1,25 \cdot 10^{-3}$ . Encore une fois, la méthode est insensible au paramètre  $t_0$ .

Nous avons donc appliqué à nouveau la « méthode globale » en choisissant comme paramètres variables  $\log(D_0)$ ,  $E_a$  et  $\Delta H_a$  et en faisant varier « manuellement », en dehors du code,  $t_0$  sur l'ensemble de ses valeurs physiques (cf. partie III.1.4.2), c'est-à-dire, sur l'intervalle  $[1,0 \cdot 10^{-15} \text{ s} - 1,0 \cdot 10^{-13} \text{ s}]$ .

### **III.3.2.3 Obtention des paramètres pour $t_0$ égal à $1,0 \cdot 10^{-15} \text{ s}$**

La valeur obtenue pour chacun des paramètres est présentée dans le tableau III-28. Chaque écart-type a été déterminé par la méthode de Monté-Carlo (cf. partie I.4.4.2).

La valeur du  $\chi^2_{\text{réduit}}$  obtenue est plus élevée pour l'application de la « méthode globale » aux données du lithium (soit 2,78) que pour l'application de cette même méthode aux données du sodium (soit 1,49). La plus faible quantité de données pour le lithium n'est pas responsable de cela, car le rapport du nombre de données libres (nombre de données – nombre de paramètres variables) sur le nombre de données est le même dans les deux cas (6/9

pour le lithium et 10/15 pour le sodium). Par contre, la précision des mesures pour chacun des éléments peut en être responsable. En raison de la faible quantité de données pour le lithium et de la précision des mesures, l'écart-type obtenu pour le paramètre  $\log(D_0)$  (soit 2,2) est élevé en comparaison avec sa valeur (soit 1,3).

$\log(D_0)$ en $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	$E_a$ en eV	$\Delta H_a$ en eV	$\chi^2_{\text{réduit}}$
$1,3 \pm 2,2$	$4,7 \pm 0,9$	$5,24 \pm 0,02$	2,78

**Tab. III-28** – Valeurs obtenues pour les paramètres  $\log(D_0)$ ,  $E_a$  et  $\Delta H_a$  en prenant  $t_0$  égal à  $1,0 \cdot 10^{-15}$  s

#### **III.3.2.4 Obtention des paramètres pour $t_0$ égal à $1,0 \cdot 10^{-13}$ s**

La valeur obtenue pour chacun des paramètres est présentée dans le tableau III-29.

$\log(D_0)$ en $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	$E_a$ en eV	$\Delta H_a$ en eV	$\chi^2_{\text{réduit}}$
$5,4 \pm 2,6$	$6,4 \pm 1,0$	$4,40 \pm 0,02$	2,79

**Tab. III-29** – Valeurs obtenues pour les paramètres  $\log(D_0)$ ,  $E_a$  et  $\Delta H_a$  en prenant  $t_0$  égal à  $1,0 \cdot 10^{-13}$  s. L'écart-type de chacun des paramètres a été déterminé par la méthode de Monté-Carlo (cf. partie I.4.4.2)

$\chi^2_{\text{réduit}}$  varie très peu sur l'intervalle  $[1,0 \cdot 10^{-15} \text{ s} - 1,0 \cdot 10^{-13} \text{ s}]$ . Nous n'avons pas dépassé les valeurs limites de cet intervalle, car elles représentent les limites physiques pour  $t_0$  (cf. partie III.1.4.2). Nous avons trouvé un minimum local pour  $t_0$  dans cet intervalle (égal à  $3,4 \cdot 10^{-15}$  s), mais les variations de  $\chi^2$  sont trop faibles pour pouvoir accepter cette valeur. Nous ne pouvons donc pas déduire la valeur de  $t_0$  à partir des données d'efficacité totale du lithium. Sur l'intervalle des valeurs probables pour  $t_0$ , les paramètres  $\log(D_0)$ ,  $E_a$  et  $\Delta H_a$  ont le comportement suivant :

- $\log(D_0)$  croît fortement de  $1,3 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  à  $5,4 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ .
- $E_a$  croît de 4,7 eV à 6,4 eV.
- $\Delta H_a$  décroît de 5,2 eV à 4,4 eV.

#### **III.3.2.5 Bilan des paramètres obtenus**

Le bilan des valeurs des paramètres, effectué sur l'intervalle des valeurs probables pour  $t_0$ , est présenté dans le tableau III-30. La valeur retenue, pour chacun des paramètres, est la valeur moyenne des deux valeurs obtenues pour les valeurs limites de  $t_0$ .



Le paramètre  $\log(D_0)$  varie beaucoup sur l'intervalle des valeurs probables pour  $t_0$ . L'écart-type associé à cette variation, cumulé à l'écart-type lié à la méthode et à la précision des données expérimentales (dédit par la méthode de Monté-Carlo), engendre une forte imprécision sur la détermination du paramètre  $\log(D_0)$ .

La valeur de  $\Delta H_a$  est plus élevée pour le lithium que pour le sodium (4,8 eV au lieu de 4,1 eV). Cela paraît logique, car le lithium est plus électronégatif que le sodium et donc, plus réactif chimiquement. Le temps de collage est donc plus important pour le lithium que pour le sodium.

paramètre	$\log(D_0)$ en $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	$E_a$ en eV	$\Delta H_a$ en eV
valeur	3,4	5,5	4,8
écart-type déduit par la méthode de Monté-Carlo	2,4	1,0	0,02
écart-type sur l'intervalle des valeurs probables pour $t_0$	2,1	0,9	0,4
écart-type total	3,1	1,3	0,4

**Tab. III-30** – Valeur finale pour chacun des paramètres et écarts-types associés

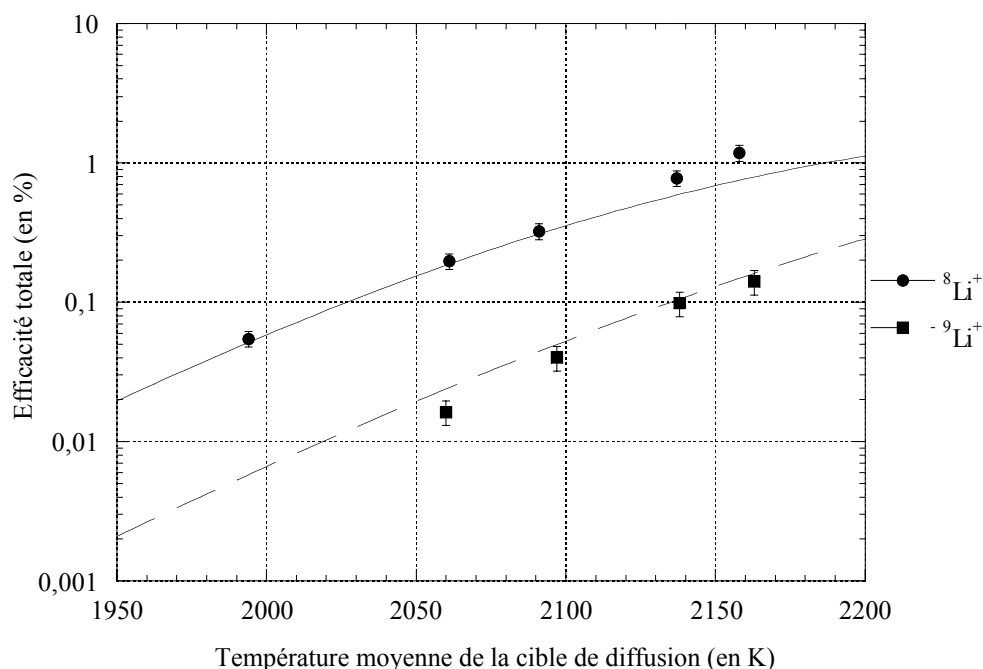
La comparaison, pour chacun des paramètres, entre la valeur estimée (cf. partie III.1.4.3) et celle obtenue à partir des mesures expérimentales est présentée dans le tableau III-31. Les valeurs des paramètres obtenues sont très différentes de celles qui ont pu être estimées (mis à part pour  $\log(D_0)$  qui est cependant déterminé avec peu de précision). Les deux coefficients d'Arrhenius  $\log(D_0)$  et  $E_a$  estimés sont issus de mesures expérimentales (cf. partie III.1.4.3) de diffusion du lithium dans une autre variété de carbone (AXM-5Q1 au lieu de ZXF-5Q1). Les deux variétés de carbone, bien qu'issues du même fabricant, ne semblent pas avoir les mêmes propriétés de diffusion.

paramètre	$\log(D_0)$ en $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	$E_a$ en eV	$\Delta H_a$ en eV
valeur estimée	4,5	2,3	3,6
valeur déduite des mesures expérimentales	3,4 $\pm 3,1$	5,5 $\pm 1,3$	4,8 $\pm 0,4$

**Tab. III-31** – Comparaison, pour chacun des paramètres, entre la valeur estimée et celle déduite des mesures expérimentales

Les courbes d'efficacité totale de production des faisceaux de  $^8\text{Li}^+$  et  $^9\text{Li}^+$ , déduites des paramètres obtenus à partir des mesures expérimentales, sont représentées en fonction de la

température moyenne de la cible de diffusion dans la figure III-9. Les courbes ont été obtenues en prenant  $t_0$  égal à  $1,0 \cdot 10^{-14}$  s.



**Fig. III-9** – Courbes d'efficacité totale de production des faisceaux de  $^8\text{Li}^+$  et  $^9\text{Li}^+$  en fonction de la température moyenne de la cible de diffusion

Les valeurs moyennes des efficacités de diffusion, effusion, ionisation et totale, pour la production des faisceaux de  $^8\text{Li}^+$ ,  $^9\text{Li}^+$  et  $^{11}\text{Li}^+$ , déduites des paramètres obtenus sont présentées dans le tableau III-32.

faisceau produit	température de l'ensemble cible + container	efficacité de diffusion moyenne	efficacité d'effusion moyenne	efficacité d'ionisation moyenne	efficacité totale moyenne
$^8\text{Li}^+$ ( $T_{1/2} = 838$ ms)	2000 K	30 %	9,7 %	4,9 %	0,058 %
	2150 K	68 %	43 %	5,7 %	0,69 %
$^9\text{Li}^+$ ( $T_{1/2} = 178,3$ ms)	2000 K	15 %	2,2 %	4,9 %	0,0066 %
	2150 K	40 %	14 %	5,7 %	0,13 %
$^{11}\text{Li}^+$ ( $T_{1/2} = 8,5$ ms)	2000 K	3,2 %	0,11 %	4,9 %	$7,0 \cdot 10^{-5}$ %
	2150 K	9,9 %	0,76 %	5,7 %	0,0018 %

**Tab. III-32** – Efficacités moyennes déduites de diffusion, effusion, ionisation et totale pour la production des faisceaux de  $^8\text{Li}^+$ ,  $^9\text{Li}^+$  et  $^{11}\text{Li}^+$

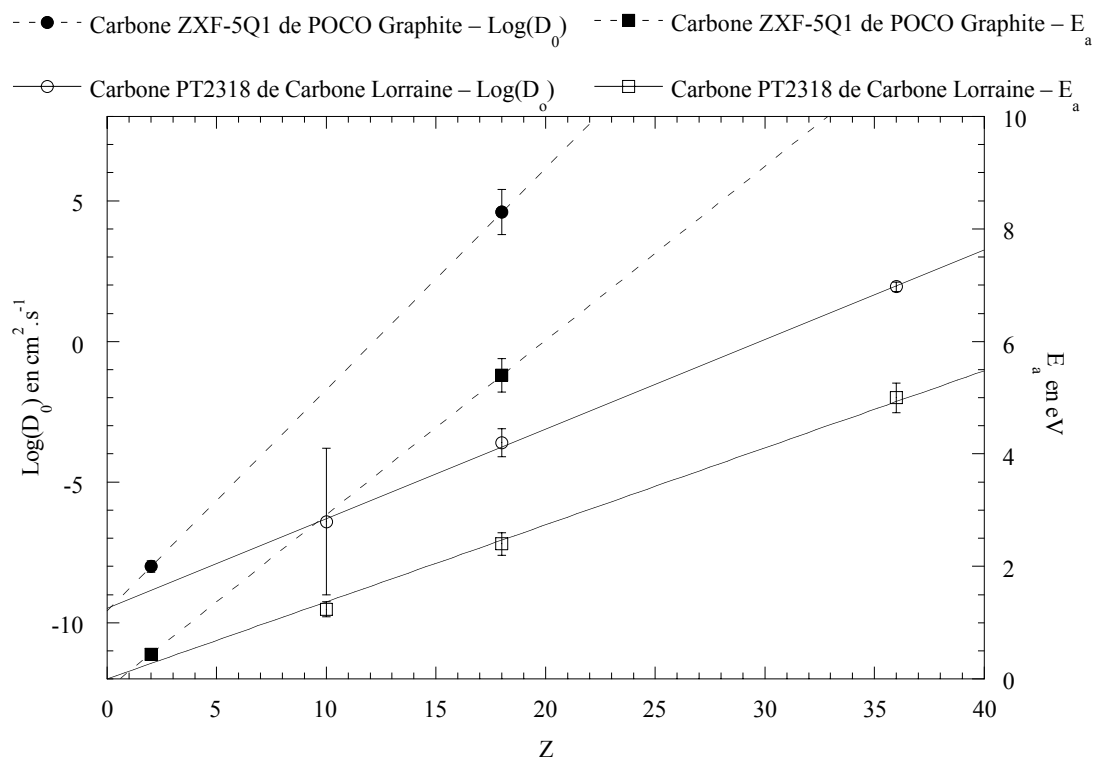
Contrairement au cas de la production des faisceaux de sodium radioactif, l'efficacité d'effusion est plus pénalisante que l'efficacité de diffusion pour la production des faisceaux

de lithium radioactif. L'effusion est le facteur le plus limitant en efficacité pour les courts temps de vie, alors que c'est l'efficacité d'ionisation pour les longs temps de vie. Les courbes d'efficacité totale (cf. figure III-9) indiquent que le plateau en efficacité (saturation de l'efficacité de diffusion-effusion) est encore loin d'être atteint à 2200 K.

### III.3.3 Cas particulier des coefficients d'Arrhenius

Les coefficients d'Arrhenius, mesurés au GANIL, correspondant à la diffusion de gaz rares [Lan-01] dans du carbone ZXF-5Q1 de POCO Graphite [Poc-99] et à la diffusion de gaz rares [Mau-98] dans du carbone PT2318 de Carbone Lorraine [Car-95] sont représentés dans la figure III-10.

Dans une même variété de carbone, les coefficients d'Arrhenius des gaz rares évoluent de façon linéaire et croissante par rapport au nombre de protons. Pour le coefficient d'Arrhenius  $E_a$ , cette linéarité passe même par l'origine (proportionnalité au nombre de protons). La valeur de ces coefficients d'Arrhenius dépend également de la variété de carbone utilisée.

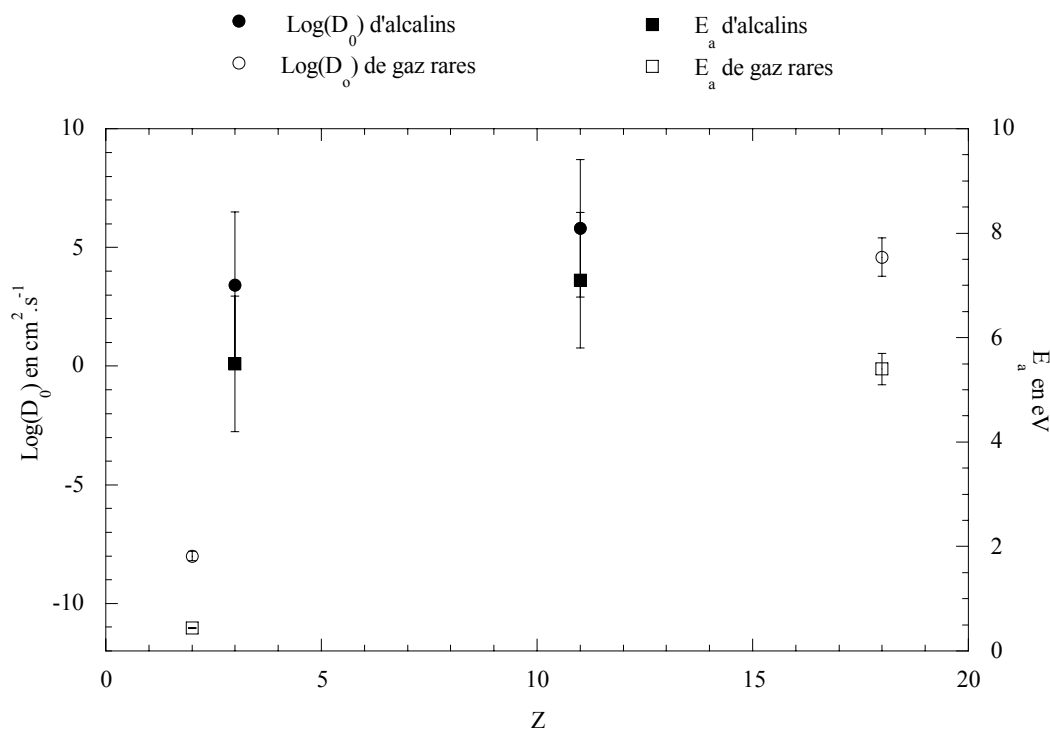


**Fig. III-10** – Représentation des coefficients d'Arrhenius correspondant à la diffusion de gaz rares [Lan-01] dans du carbone ZXF-5Q1 de POCO Graphite [Poc-99] et à la diffusion de gaz rares [Mau-98] dans du carbone PT2318 de Carbone Lorraine [Car-95]

Les coefficients d'Arrhenius, mesurés dans cette thèse, correspondant à la diffusion du lithium et du sodium dans du carbone ZXF-5Q1 de POCO Graphite [Poc-99] et ceux correspondant à la diffusion de gaz rares [Lan-01] dans ce même carbone sont représentés dans la figure III-11.

Les coefficients d'Arrhenius des alcalins évoluent également de façon croissante en fonction du nombre de protons. Par contre, cette évolution n'est pas alignée avec celle des gaz rares.

Il faudrait disposer des coefficients d'Arrhenius d'un troisième alcalin pour préciser l'évolution en fonction de  $Z$  et savoir, par exemple, si l'évolution est linéaire par rapport à  $Z$  pour les alcalins, comme c'est le cas pour les gaz rares.



**Fig. III-11** – Représentation des coefficients d'Arrhenius correspondant à la diffusion du lithium et du sodium dans du carbone ZXF-5Q1 de POCO Graphite [Poc-99] et de ceux correspondant à la diffusion de gaz rares [Lan-01] dans ce même carbone

### III.4 Perspectives

L'ensemble cible-source MONOLITHE produit des faisceaux d'alcalins radioactifs monochargés. Un couplage entre MONOLITHE et la source d'ions NANOGAN III est actuellement à l'étude. Le faisceau radioactif produit par MONOLITHE sera injecté dans la source ECR pour transformer le faisceau monochargé en un faisceau multichargé. Le but de cette transformation est de pouvoir fournir, dans un avenir très proche, des faisceaux d'alcalins radioactifs sur SPIRAL.

La détermination des paramètres de l'ensemble cible-source MONOLITHE (coefficients d'Arrhenius, etc.), à partir de nos mesures expérimentales, a montré que l'efficacité d'effusion est plus pénalisante que l'efficacité de diffusion pour la production des faisceaux de lithium radioactif. Suite à des mesures expérimentales récentes [Ben-02], effectuées à ISOLDE, obtenant de bonnes propriétés d'effusion dans un ensemble spécifique

en tantale (efficacité totale supérieure à 80 %, pour le  $^8\text{Li}$ , à environ 2400 K), une cible et un container en tantale sont à l'étude pour la production des faisceaux de lithium radioactif. Le carbone est conservé pour la production des autres alcalins.

## CHAPITRE IV

### *La production des faisceaux d'éléments radioactifs condensables et/ou à court temps de vie avec la technique IGISOL*

Nous avons vu, dans les chapitres précédents, qu'il est difficile de produire des faisceaux d'éléments radioactifs condensables à partir des techniques « cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique » et « cible mince – stoppeur solide – source d'ions – séparateur isotopique » basées sur la méthode ISOL (cf. partie 2 du chapitre I). En effet, en raison des pertes associées à la diffusion et de celles par collage, à température de salle, associées à l'effusion, leur développement nécessite :

- dans tous les cas, de travailler à température de cible élevée (de l'ordre de 2000 K à 3000 K) afin de faciliter la diffusion des éléments radioactifs produits.
- soit d'éviter toute paroi froide entre la cible et la source d'ions pour minimiser le temps de collage sur les parois (cf. exemple de la production des faisceaux d'alcalins radioactifs avec MONOLITHE, dans le chapitre III).
- soit de former une molécule, volatile à température de salle, pour éviter le collage sur les parois froides. Cette molécule est constituée de l'élément radioactif condensable d'intérêt associé à d'autres éléments (cf. exemple de la production des faisceaux d'oxygène radioactif avec SPIRAL, dans la partie 3 du chapitre II).

Nous avons vu également qu'avec ces deux techniques, la production des faisceaux d'ions radioactifs à court temps de vie (inférieur à la dizaine de milliseconde) devient très difficile en raison des pertes associées à la diffusion et à l'effusion.

La technique « cible mince – guide d'ions – séparateur isotopique », plus connue sous le nom IGISOL (Ion Guide Isotope Separator On-Line) [Ärj-81-a][Ärj-81-b][Ärj-87], a été créée dans le but d'éviter les pertes associées à la diffusion et à l'effusion. Basée sur la

méthode ISOL, cette technique très rapide (la durée entre la production d'un noyau dans la cible et la séparation isotopique pour ce même noyau est de l'ordre de la milliseconde) permet de produire des faisceaux d'éléments radioactifs condensables et/ou à court temps de vie [Äys-01] en s'affranchissant des problèmes suivants :

- le chauffage de la cible et/ou des parois froides : la technique IGISOL nécessite aucun chauffage.
- l'éventuelle formation de molécules volatiles : cette étape n'est pas nécessaire, avec cette technique, pour former des faisceaux d'éléments radioactifs condensables.
- l'utilisation d'une source d'ions pour ioniser les éléments radioactifs produits : cette étape n'est pas nécessaire non plus car les éléments radioactifs produits restent ionisés.

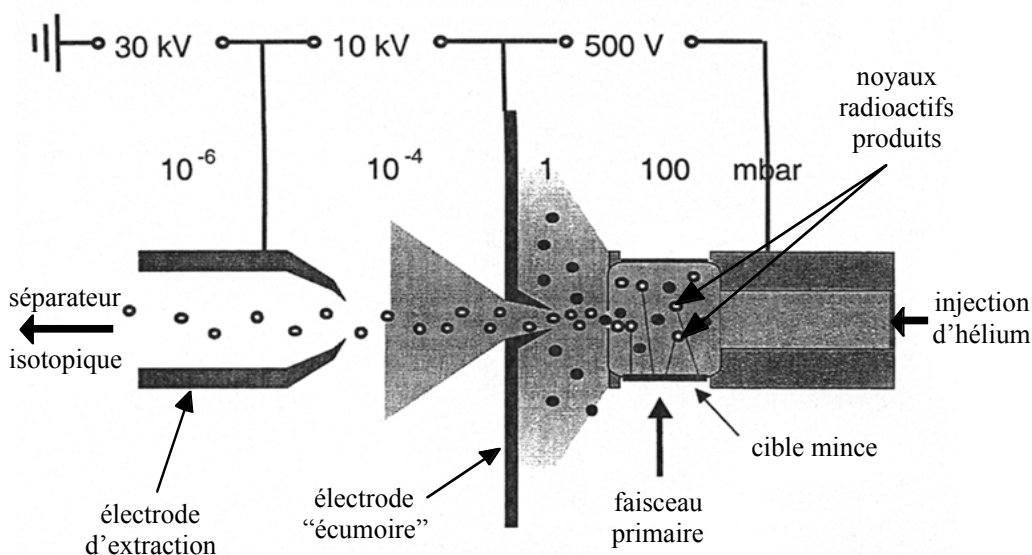
Après avoir détaillé le principe de fonctionnement de la technique IGISOL dans la première partie de ce chapitre, les limitations liées à l'utilisation de la méthode seront abordées en deuxième partie.

Un bilan fonctionnel qualitatif des ensembles IGISOL, suivant le type de réaction nucléaire utilisé pour produire les éléments radioactifs, sera alors effectué en troisième partie.

Enfin, nous terminerons ce chapitre par la description théorique du Code MI-GI-CHEMIN, réalisé dans le cadre de cette thèse, dont le but est de reproduire le comportement des ions dans un guide d'ions, rempli d'hélium et d'une concentration donnée d'impuretés, incluant des champs électriques et magnétiques [Gib-00].

## **IV.1 Principe de fonctionnement de la technique IGISOL**

Un schéma simplifié de la technique est présenté dans la figure IV-1 [Äys-01].



**Fig. IV-1** – Schéma simplifié de la technique IGISOL [Äys-01]

La cible utilisée pour produire les éléments radioactifs est une cible mince. Ce concept est volontaire : dans la technique IGISOL, les éléments radioactifs produits ne sont pas arrêtés dans la cible pour éviter leur neutralisation. Ils en ressortent donc avec une distribution en état

de charge. Ils sont alors thermalisés dans de l'hélium (quelquefois de l'argon), tout en restant ionisés, et transportés par un flux gazeux jusqu'à la sortie du guide d'ions. Ils sont alors accélérés par une électrode "écumoire" dont le rôle est de retenir une grosse partie de l'hélium, puis accélérés par l'électrode d'extraction et transportés jusqu'au séparateur isotopique.

#### **IV.1.1 Conservation de l'état chargé des éléments radioactifs produits**

Les éléments radioactifs, produits dans la cible, pénètrent dans le guide d'ions avec une distribution initiale en état de charge. Pendant la thermalisation dans l'hélium, ils subissent des réactions d'échange de charge de la forme suivante :



où

- ER représente l'élément radioactif.
- q, le nombre de charge initial de l'élément.

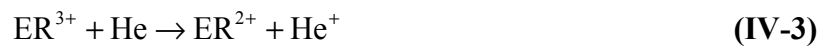
Le bilan énergétique, Q, du système associé à la réaction est déterminé, pour une transition de l'état fondamental du système ( $ER^{q+}$ , He) vers l'état fondamental du système ( $ER^{(q-1)+}$ ,  $He^+$ ), par la relation suivante :

$$Q = V_{ER}^{(q-1)+/q+} - V_{He}^{n/1+} \quad (IV-2)$$

où

- $V_{ER}^{(q-1)+/q+}$  représente le potentiel de  $q^{ième}$  ionisation de l'élément radioactif initialement ionisé à l'état de charge  $(q-1)+$ .
- $V_{He}^{n/1+}$ , le potentiel de première ionisation de l'hélium.

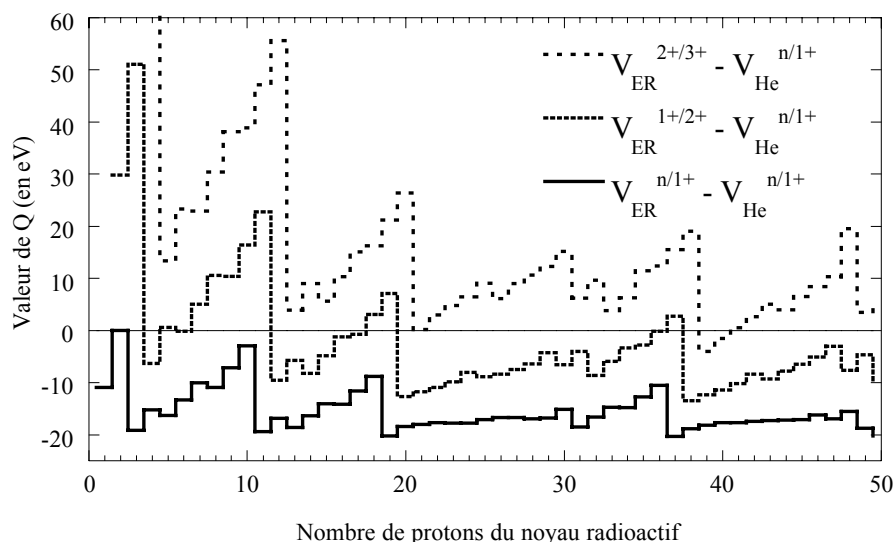
Le signe de Q détermine le caractère exoénergétique ou endoénergétique de la réaction et Q, sa faisabilité. Plus la valeur de Q est élevée et positive, plus la réaction est probable. Pendant le ralentissement, l'énergie cinétique élevée, de l'élément radioactif, rend probable certaines réactions qui ne le sont pas une fois l'élément radioactif thermalisé. Les valeurs de Q, pour des éléments allant de l'hydrogène ( $Z = 1$ ) jusqu'à l'étain ( $Z = 50$ ), ont été représentées, dans la figure IV-2, pour les trois réactions d'échange de charge suivantes dans de l'hélium :



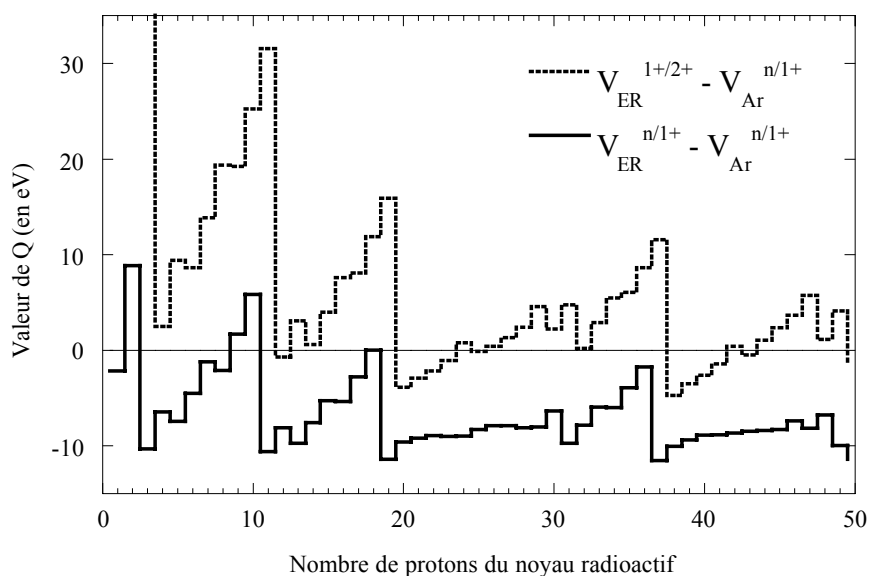
Beaucoup d'éléments restent ionisés à l'état de charge  $2+$  dans de l'hélium pur ( $Q = V_{ER}^{1+/2+} - V_{He}^{n/1+} < 0$ ). Ce sont surtout les éléments les plus légers ( $Z$  très petit) qui terminent majoritairement ionisés à l'état de charge  $1+$ .



Les valeurs de  $Q$  ont également été représentées pour les mêmes éléments, dans la figure IV-3, pour les réactions d'échange de charge  $2+/1+$  et  $1+/neutre$ , mais cette fois-ci dans de l'argon. La plupart des éléments restent ionisés à l'état de charge  $1+$ . L'argon peut donc également être utilisé comme gaz thermalisant.



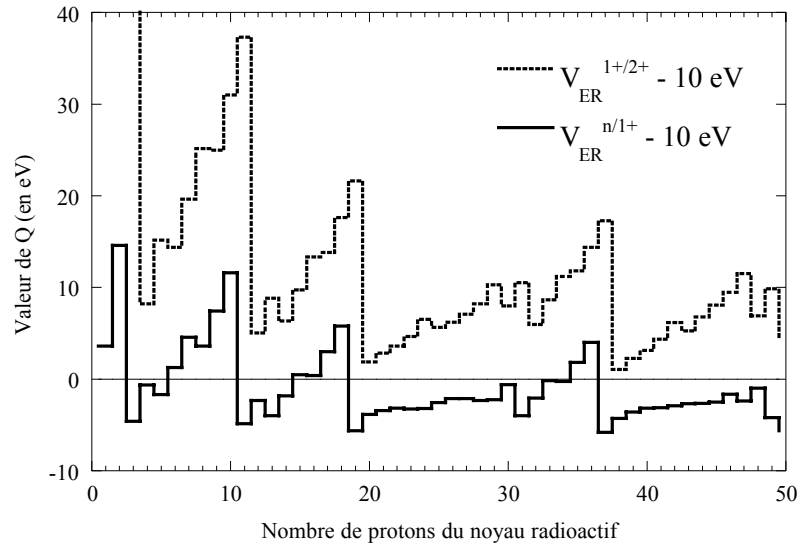
**Fig. IV-2** – Bilan énergétique,  $Q$ , du système associé à des réactions d'échange de charge dans de l'hélium, pour des éléments allant de l'hydrogène ( $Z = 1$ ) jusqu'à l'étain ( $Z = 50$ )



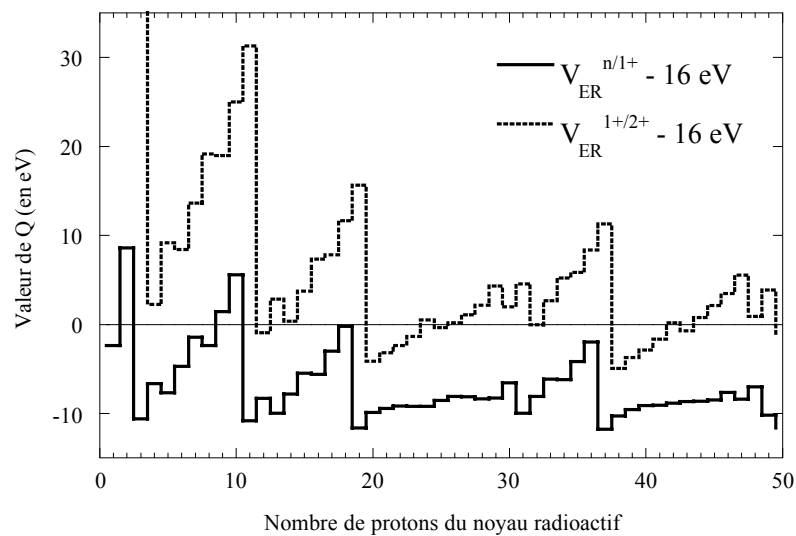
**Fig. IV-3** – Bilan énergétique,  $Q$ , du système associé à des réactions d'échange de charge dans de l'argon, pour des éléments allant de l'hydrogène ( $Z = 1$ ) jusqu'à l'étain ( $Z = 50$ )

Le gaz utilisé pour thermaliser les ions radioactifs produits n'est jamais complètement pur. Il possède des impuretés telles que  $H_2O$ ,  $N_2$ ,  $O_2$ ,  $H_2$  ou encore des molécules halogénées. Le potentiel d'ionisation des impuretés présentes est typiquement compris entre 10 eV et 16

eV. Dans la figure IV-4, les valeurs de  $Q$  ont été représentées pour des réactions d'échange de charge avec une impureté de potentiel d'ionisation 10 eV et dans la figure IV-5, avec une impureté de potentiel d'ionisation 16 eV. Les éléments qui sont restés ionisés à l'état de charge 2+ dans de l'hélium sont ramenés à l'état de charge 1+ grâce à la présence des impuretés. Une concentration, en impuretés, inférieure à 1 ppm suffit pour obtenir facilement un état de charge 1+. Cependant, les impuretés de potentiel d'ionisation autour de 10 eV peuvent provoquer une neutralisation des éléments les plus légers. Par conséquent, moins il y a d'impuretés, mieux le système se comporte.



**Fig. IV-4** – Bilan énergétique,  $Q$ , du système associé à des réactions d'échange de charge avec une impureté de potentiel d'ionisation 10 eV, pour des éléments allant de l'hydrogène ( $Z = 1$ ) jusqu'à l'étain ( $Z = 50$ )



**Fig. IV-5** – Bilan énergétique,  $Q$ , du système associé à des réactions d'échange de charge avec une impureté de potentiel d'ionisation 16 eV, pour des éléments allant de l'hydrogène ( $Z = 1$ ) jusqu'à l'étain ( $Z = 50$ )

## **IV.1.2 Transport des ions radioactifs thermalisés**

### **IV.1.2.1 Par le flux gazeux**

Les ions radioactifs, thermalisés dans l'hélium et ramenés à un état de charge  $1+$ , sont transportés par le flux d'hélium jusqu'à la sortie du guide d'ions. L'écoulement du gaz doit être suffisamment rapide pour ne pas perdre une partie des ions radioactifs produits par neutralisation, suite à un contact avec une paroi du guide d'ions. En effet, la diffusion aléatoire des ions radioactifs dans le gaz peut engendrer ces contacts sur les parois.

Le temps de diffusion moyen,  $\overline{\tau_d}$ , caractérise cette diffusion aléatoire dans le gaz. Dans le cas particulier d'un guide d'ions cylindrique de longueur infinie et de rayon  $r_0$ , le temps de diffusion moyen d'éléments initialement localisés sur l'axe du guide est exprimé [Bér-94] de la manière suivante :

$$\overline{\tau_d} = \left( \frac{r_0}{2,4} \right)^2 \frac{1}{D} \quad (\text{IV-6})$$

où  $D$ , en  $\text{cm}^2.\text{s}^{-1}$ , représente le coefficient de diffusion et  $r_0$  est exprimé en cm. Une valeur moyenne du coefficient de diffusion dans l'hélium, à température de salle, est donnée par l'équation de Biondi et Brown [Bio-49] :

$$D \approx \frac{650}{P} \quad (\text{IV-7})$$

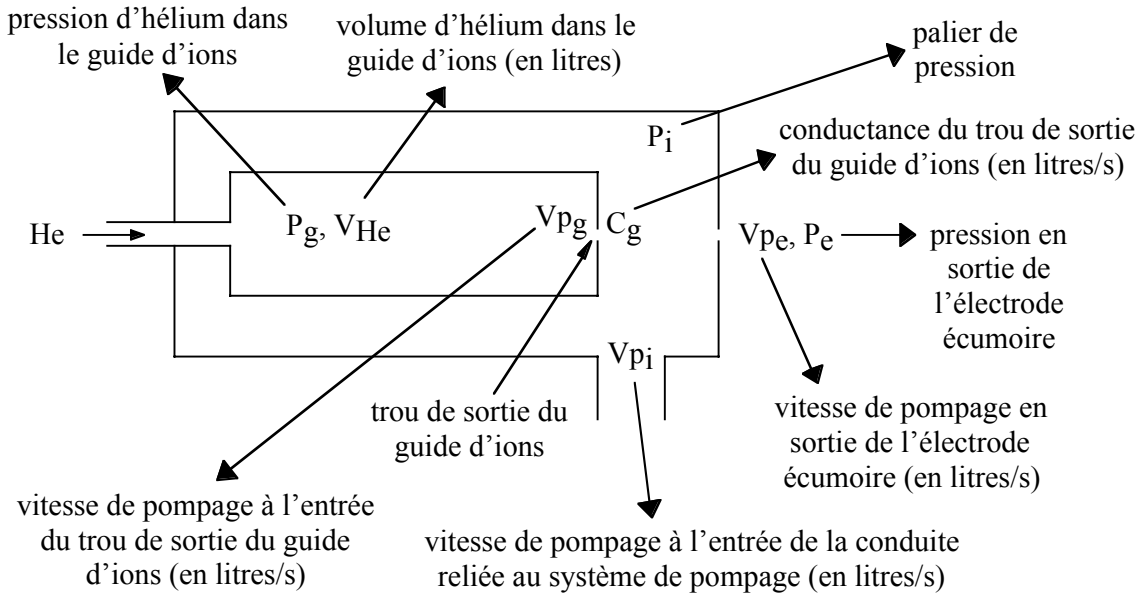
où  $P$  est la pression d'hélium exprimée en mbar. Le temps de diffusion moyen augmente donc avec la pression. Pour un guide d'ions cylindrique de rayon 1 cm et rempli d'hélium à une pression de 500 mbar, le coefficient de diffusion moyen vaut environ  $1,3 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$  et le temps de diffusion moyen, environ 130 ms.

Le temps de diffusion moyen doit être comparé avec le temps d'évacuation moyen des ions contenus dans l'hélium du guide d'ions, car, un moyen d'éviter les pertes associées à la diffusion aléatoire des ions radioactifs dans l'hélium est de choisir un temps d'évacuation moyen de l'hélium très inférieur au temps de diffusion moyen dans l'hélium.

Pour déterminer ce temps d'évacuation moyen,  $\overline{\tau_e}$ , quelques paramètres importants du guide d'ions ont été définis dans la figure IV-6. A partir de ces paramètres, le temps d'évacuation moyen des ions est exprimé de la manière suivante :

$$\overline{\tau_e} = \frac{V_{\text{He}}}{2.Vp_g} \quad (\text{IV-8})$$

Pour déterminer le temps d'évacuation moyen des ions, la vitesse de pompage à l'entrée du trou de sortie du guide d'ions doit donc également être déterminée.



**Fig. IV-6** – Définition de quelques paramètres du guide d'ions

A partir des paramètres définis dans la figure IV-6, la conservation du débit d'hélium est exprimée de la manière suivante :

$$V_{p_g} \cdot P_g = C_g \cdot (P_g - P_i) = V_{p_i} \cdot P_i + V_{p_e} \cdot P_e \quad (\text{IV-9})$$

Le système de pompage associé à la technique IGISOL est suffisant pour que le débit en sortie de l'électrode écumoire soit négligeable comparé au débit du système de pompage. Dans ces conditions, la vitesse de pompage à l'entrée du trou de sortie du guide d'ions est exprimée de la manière suivante :

$$\frac{1}{V_{p_g}} \approx \frac{1}{C_g} + \frac{1}{V_{p_i}} \quad (\text{IV-10})$$

Dans la technique IGISOL, la conductance du trou de sortie du guide d'ions ( $C_g$ ) est négligeable devant la vitesse de pompage à l'entrée de la conduite reliée au système de pompage ( $V_{p_i}$ ). C'est donc cette conductance qui détermine la vitesse de pompage du guide d'ions ( $V_{p_g}$ ), puisque cette vitesse est exprimée, d'après la simplification de l'équation IV-10, de la manière suivante :

$$V_{p_g} \approx C_g \quad (\text{IV-11})$$

Le temps d'évacuation moyen des ions contenus dans l'hélium du guide d'ions dépend donc directement de la conductance du trou de sortie du guide d'ions et du volume d'hélium, soit :

$$\overline{\tau_e} \approx \frac{V_{He}}{2 \cdot C_g} \quad (\text{IV-12})$$

Pour de l'hélium, cette conductance est exprimée de la manière suivante [Ärj-86-a] :

$$C_g \approx 0,45(\phi_g)^2 \quad (\text{IV-13})$$

où  $C_g$  est exprimé en l/s et  $\phi_g$ , qui représente le diamètre du trou de sortie, en mm. Pour un diamètre du trou de sortie du guide d'ions de 1 mm et un volume du guide d'ions de 1 cm<sup>3</sup>, le temps d'évacuation moyen de l'hélium du guide d'ions est d'environ 1 ms.

Le volume d'un guide d'ions est de l'ordre de quelques cm<sup>3</sup>, ce qui permet d'assurer un écoulement rapide des ions radioactifs thermalisés dans l'hélium. Cependant, pour certains types de réactions nucléaires utilisées pour produire les ions radioactifs, les guides d'ions nécessitent des volumes d'hélium beaucoup plus élevés (de plusieurs ordres de grandeur). Dans ce cas, le temps d'évacuation moyen de l'hélium devient très largement supérieur à la milliseconde (de plusieurs ordres de grandeur).

#### **IV.1.2.2 Par un champ électrique**

Dans le cas où le temps d'évacuation moyen de l'hélium du guide d'ions est beaucoup trop long (de plusieurs ordres de grandeur supérieur à la milliseconde), l'idée est d'utiliser un champ électrique afin d'accélérer les ions radioactifs et de les guider rapidement vers la sortie du guide d'ions.

#### **IV.1.2.3 Cas particulier du champ magnétique**

Contrairement au champ électrique, le champ magnétique ne permet pas d'accélérer les ions radioactifs thermalisés (le champ magnétique conserve l'énergie cinétique). L'idée est d'empêcher les ions radioactifs d'aller heurter une paroi du guide d'ions en courbant leur trajectoire sous l'influence du champ magnétique.

#### **IV.1.3 Extraction des ions radioactifs du guide d'ions**

Les ions radioactifs, en sortie du guide d'ions, subissent le potentiel accélérateur de l'électrode écumoire, soit un champ électrique de l'ordre de 10<sup>4</sup> à 10<sup>5</sup> V/m [Ärj-86-b][Tas-89]. Pour ne pas détériorer les propriétés optiques du faisceau d'ions radioactifs créé, la pression doit être faible entre le trou de sortie du guide d'ions et l'électrode écumoire (inférieure ou égale à 10<sup>-4</sup> mbar en sortie de l'électrode écumoire).

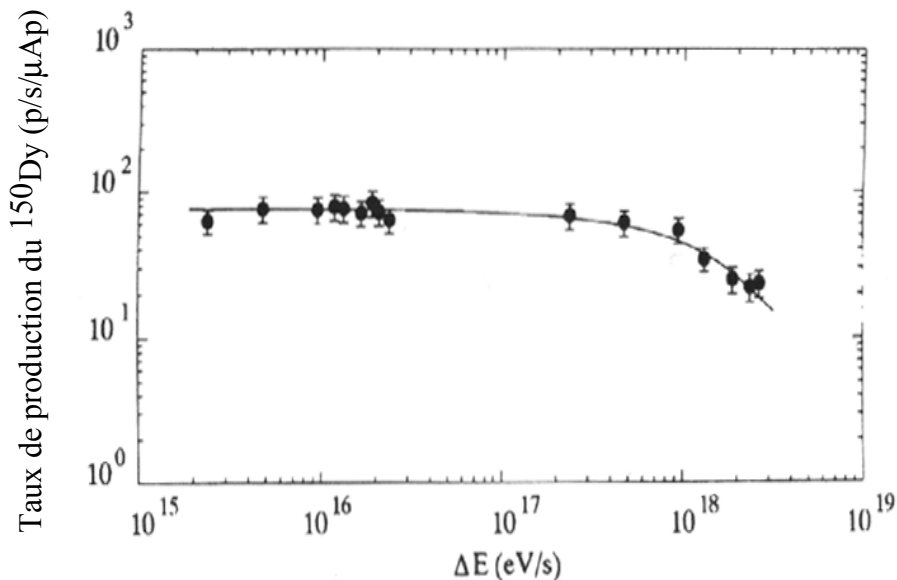
Un autre type d'électrode, le SPIG (SextuPole Ion Guide) [Xu-93], permet d'obtenir de meilleures qualités optiques que l'électrode écumoire (dispersion en énergie du faisceau de l'ordre de 1 eV avec le SPIG comparé à 10-100 eV avec l'électrode écumoire [Den-97]).

Le faisceau d'ions radioactifs est ensuite accéléré par l'électrode d'extraction pour être transporté jusqu'au séparateur isotopique.

## IV.2 Limitations liées à l'utilisation de la technique IGISOL

Le principal inconvénient de la méthode, qui a été observé dès les premiers pas de la technique IGISOL (cf. figure 5 de la référence [Mor-87] et figure 7 de la référence [Yos-87]), est la diminution de l'efficacité totale du système lorsque le dépôt d'énergie du faisceau primaire dans l'hélium devient trop élevé. Ce phénomène est communément appelé « l'effet plasma », car il est lié à une trop importante ionisation de l'hélium.

Un exemple d'observation de l'effet plasma est représenté dans la figure IV-7 [Bér-94]. Dans le cadre de cette expérience, une diminution de moitié de l'efficacité totale du système a été observée pour un dépôt d'énergie du faisceau primaire de l'ordre de  $10^{18}$  eV/s. Dans le cadre d'autres expériences avec d'autres guides d'ions ([Mor-87], [Yos-87]), cette diminution de moitié de l'efficacité totale du système a été observée pour des dépôts d'énergie de l'ordre de  $5 \cdot 10^{16}$  eV/s. Il est donc délicat d'établir un seuil de dépôt d'énergie commun à tous les systèmes IGISOL. Cependant, il a été dernièrement établi [Den-02], au regard de mesures effectuées sur 4 installations différentes, qu'une diminution de moitié de l'efficacité totale du système est observée lorsque le dépôt d'énergie du faisceau primaire dans l'hélium atteint une valeur d'environ  $2 \cdot 10^{16}$  eV/s/cm<sup>3</sup>. L'effet plasma semble donc dépendre de la pression d'hélium, de la nature et de l'intensité du faisceau primaire. C'est en effet le cas, comme nous allons le voir par la suite.



**Fig. IV-7** – Taux de production du  $^{150}\text{Dy}$ , mesuré sur l'installation SARA/IGISOL [Bér-94], en fonction du dépôt d'énergie du faisceau primaire ( $^{40}\text{Ar}$ ) dans l'hélium (en eV/s). Le volume du guide d'ions était de 115 cm<sup>3</sup> et la pression d'hélium de 420 mbar. La chute du taux de production observée est directement liée à l'effet plasma

D'une manière générale, la diminution de l'efficacité totale du système s'explique par 3 phénomènes différents, tous les trois liés à une trop importante ionisation de l'hélium (effet plasma) :

- la neutralisation des ions radioactifs produits.

- le masquage du champ électrique par le plasma (issu de l'hélium ionisé), dans le cas où un tel champ est utilisé.
- les effets de charge-espace pendant le transport vers l'électrode écumoire.

### **IV.2.1 Neutralisation des ions radioactifs produits**

La neutralisation des ions radioactifs suite à leur diffusion aléatoire, dans l'hélium, vers les parois du guide d'ions (cf. partie IV.1.2.1) n'est pas considérée dans ce paragraphe. Il faut cependant noter que le coefficient de diffusion des ions tend vers le coefficient de diffusion ambipolaire [Ärj-86-a] en présence d'un plasma.

Le plus important mécanisme de neutralisation des ions radioactifs est la recombinaison à 3 corps, soit :



où

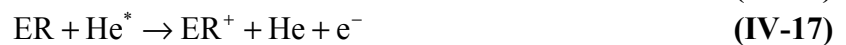
- $ER^+$  représente l'élément radioactif ionisé à l'état de charge 1+.
- $ER^*$ , l'élément radioactif excité.

Le taux de recombinaison  $\tau_R$  (en  $cm^{-3}.s^{-1}$ ) des ions radioactifs dépend d'un coefficient de recombinaison  $\alpha_R$  (en  $cm^6.s^{-1}$ ), de la concentration d'hélium  $n_{He}$  (en  $cm^{-3}$ ) et de la densité d'électrons  $n_{e^-}$  (en  $cm^{-3}$ ) selon la loi suivante [Che-77][Mas-79] :

$$\tau_R = -\frac{dn_{ER^+}}{dt} = \alpha_R n_{He} n_{e^-} n_{ER^+} \quad (IV-15)$$

où  $n_{ER^+}$  représente la concentration de l'élément radioactif à l'état de charge 1+ (en  $cm^{-3}$ ). Le taux de recombinaison dépend donc de la pression d'hélium et du nombre de paires électron-ion créées, par unité de volume et de temps, suite au dépôt d'énergie du faisceau primaire et des autres éléments énergétiques traversant l'hélium. Par conséquent, le taux de recombinaison dépend de la pression d'hélium, de la nature et de l'intensité du faisceau primaire. Un moyen de diminuer la recombinaison à 3 corps est de séparer le plus rapidement possible, par un champ électrique, les électrons des ions radioactifs.

Inversement, les ions radioactifs qui ont été neutralisés peuvent subir une ionisation via les deux réactions suivantes :



Les énergies d'excitation de l'hélium métastable sont de 19,8 eV et de 20,6 eV pour un temps de vie de, respectivement, 0,1 ms et 19,7 ms. Ces énergies sont suffisamment élevées pour permettre « l'ionisation Penning » (équation IV-17).

Les éléments radioactifs subissent donc des réactions de neutralisation (recombinaisons à 3 corps) et des réactions d'ionisation (dont l'ionisation Penning). Les taux de réaction, pour chacune de ces réactions, sont fortement dépendants des concentrations locales de chacun des réactifs concernés. Toutes ces considérations réunies rendent très complexe la compréhension des observations effectuées jusqu'à maintenant concernant l'effet plasma dans la technique IGISOL.

Une autre réaction provoque la perte des ions radioactifs produits, c'est la formation de molécules chargées par association d'un ion radioactif avec certaines impuretés présentes dans l'hélium. Cependant, l'utilisation d'un champ électrique permet de briser ces associations très fragiles.

### **IV.2.2 Masquage du champ électrique par le plasma**

Ce problème intervient lorsqu'un champ électrique est utilisé à l'intérieur du guide d'ions. Le potentiel électrique  $V_0$  est atténué à l'intérieur du plasma selon l'expression [Che-77] :

$$V = V_0 e^{-\frac{x}{\lambda_D}} \quad (\text{IV-18})$$

où  $x$  représente la distance de pénétration à l'intérieur du plasma et  $\lambda_D$ , la longueur de Debye. Cette dernière est exprimée de la manière suivante :

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{k_B T_e}{4\pi n_e e^2}} \quad (\text{IV-19})$$

où

- $T_e$  représente la température des électrons dans le plasma.
- $n_e$ , la densité d'électrons dans le plasma.
- $e$ , la charge de l'électron.

La longueur de Debye dépend de la densité d'électrons dans le plasma. Le masquage du champ électrique dépend donc directement du nombre de paires électron-ion créées, par unité de volume et de temps, suite au dépôt d'énergie du faisceau primaire. Il dépend donc de la pression d'hélium, de la nature et de l'intensité du faisceau primaire.

### **IV.2.3 Effets de charge-espace en sortie du guide d'ions**

Suite à une importante ionisation de l'hélium, la majorité des ions, qui passent le trou de sortie du guide d'ions, sont des ions d'hélium. Une quantité trop importante d'hélium ionisé, entre le trou de sortie du guide d'ions et l'électrode écumoire, peut provoquer, par effets de charge-espace, une limitation de l'intensité [Den-97] du faisceau d'ions radioactifs disponible en sortie de l'électrode écumoire.



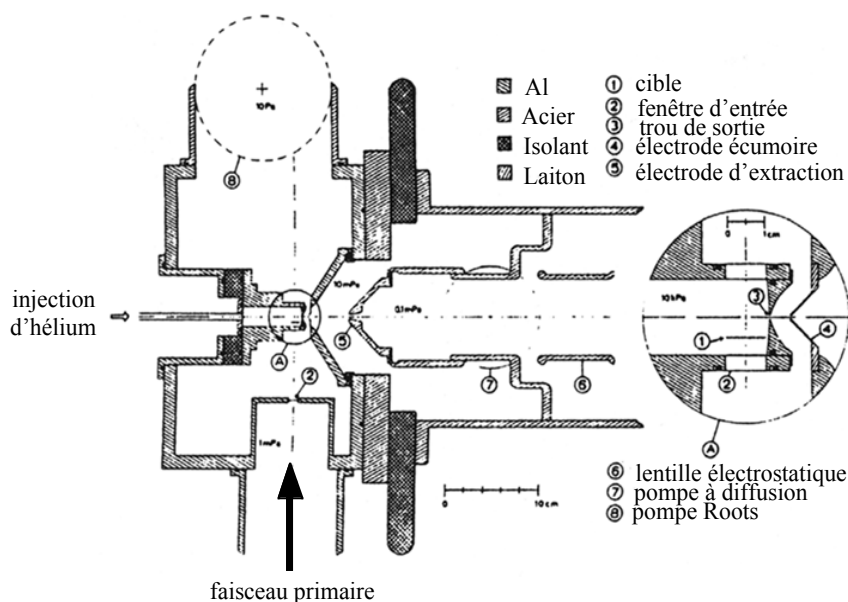
### **IV.3 Bilan fonctionnel qualitatif des ensembles IGISOL suivant le type de réaction nucléaire utilisé pour produire les ions radioactifs**

#### **IV.3.1 Dans le cas de réactions de fusion-évaporation induites par des faisceaux primaires d'ions légers**

Les premiers ensembles IGISOL ont été conçus pour ce type de réaction [Ärj-85][Ärj-87][Mor-87][Yos-87]. Celui du département de physique de l'université de Jyväskylä [Ärj-86-a] est représenté dans la figure IV-8.

Le volume de ces guides d'ions est de l'ordre du  $\text{cm}^3$ , ce qui permet une sortie très rapide (de l'ordre de la milliseconde) des ions radioactifs par le flux gazeux. Des efficacités de l'ordre de 1 à 10 % ont déjà été mesurées [Ärj-86-a] avec ce type de guide d'ions.

La cible étant placée à l'intérieur du guide d'ions, les efficacités sont pénalisées par l'effet plasma lié au dépôt d'énergie du faisceau primaire à l'intérieur du guide d'ions.



**Fig. IV-8** – Premier ensemble IGISOL du département de physique de l'université de Jyväskylä [Ärj-86-a]

#### **IV.3.2 Dans le cas de réactions de fusion-évaporation induites par des faisceaux primaires d'ions lourds**

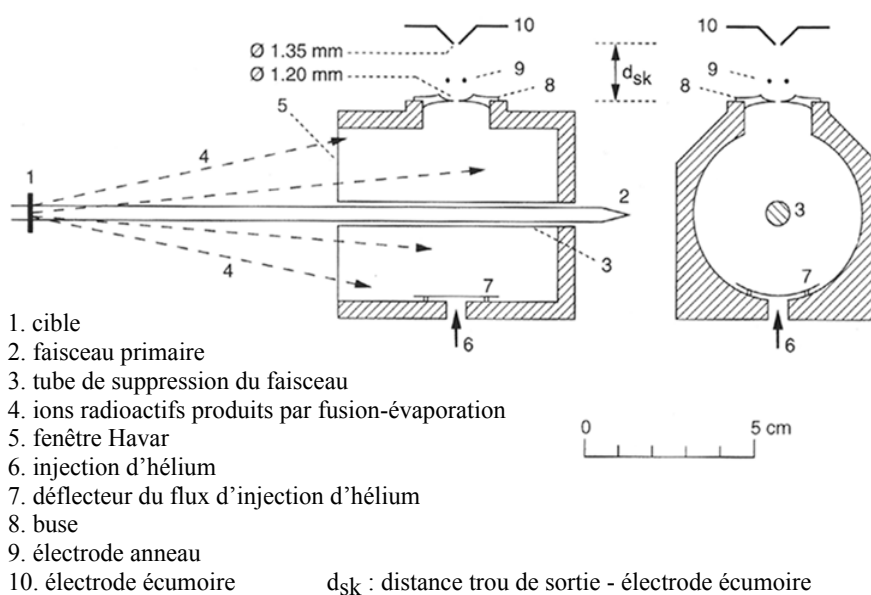
Les premières expériences IGISOL effectuées avec ce type de réaction [Den-87][Mor-87] ont montré des efficacités beaucoup plus faibles (de l'ordre de 0,01 %) que celles obtenues dans le cas de réactions de fusion-évaporation induites par des faisceaux primaires d'ions légers. Deux raisons essentielles expliquent ces faibles efficacités :

- la petite taille des guides d'ions, qui est moins efficace pour arrêter les ions radioactifs produits, en raison de la plus grande énergie de ces derniers. Une partie des ions radioactifs produits est donc perdue, suite à une implantation dans les parois du guide d'ions.

- l'effet plasma engendré par le dépôt d'énergie du faisceau primaire à l'intérieur du guide d'ions. Les faisceaux primaires étant plus lourds, les dépôts d'énergie de saturation sont plus rapidement obtenus.

Deux solutions complètement différentes ont été trouvées pour faire face à ces limitations :

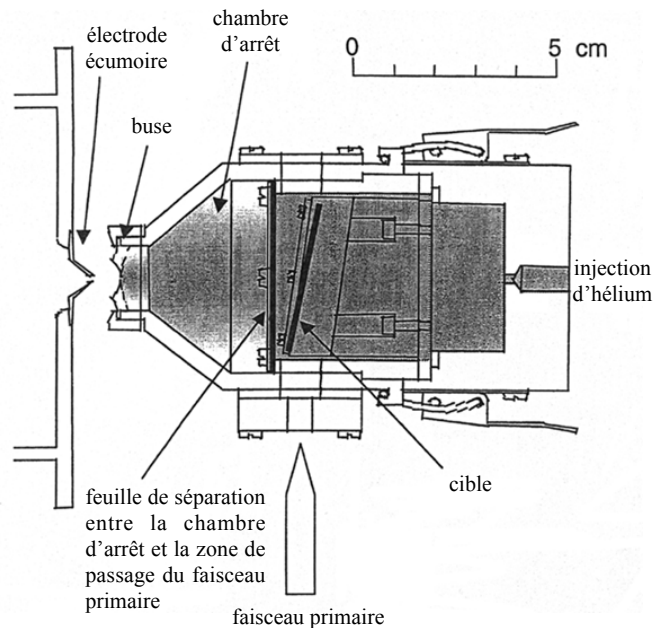
- pour la première solution, les ions radioactifs d'intérêt sont initialement séparés du faisceau primaire en utilisant un dipôle magnétique rempli de gaz (GAS-filled Recoil Isotope Separator appelé GARIS). Le guide d'ions est placé au plan focal du séparateur. La méthode présente l'énorme avantage d'éviter le dépôt d'énergie du faisceau primaire dans le guide d'ions, ce qui permet d'augmenter considérablement l'intensité des faisceaux d'ions radioactifs obtenus. Elle permet également d'effectuer un premier ralentissement des ions radioactifs produits, dans le dipôle magnétique. Les premières expériences GARIS/IGISOL [Nom-88][Ina-92][Lei-95] ont montré une efficacité de l'ordre de 10 %. Des mesures effectuées récemment sur une installation similaire à l'ANL [Sav-02], avec association d'un champ électrique dans le guide d'ions, ont montré une efficacité de 45 % avec des temps de sortie inférieurs à 10 ms.
- pour la deuxième solution, c'est la cinématique de la réaction qui est utilisée. Le cône d'émission vers l'avant des ions radioactifs produits est beaucoup plus grand que celui du faisceau primaire. En plaçant la cible de production juste avant le guide d'ions et un tube cylindrique creux traversant le guide d'ions et permettant le passage du faisceau primaire dans la partie creuse, le dépôt d'énergie du faisceau primaire dans le guide d'ions est évité. Cette deuxième solution porte le nom de « Shadow Method ». Elle a montré des efficacités de l'ordre de 0,1 à 1 % [Bér-94][Den-98]. Une vue géométrique du guide d'ions, basé sur cette deuxième solution et utilisé au département de physique de l'université de Jyväskylä [Den-98], est représentée dans la figure IV-9.



**Fig. IV-9** – Vue géométrique du guide d'ions, basé sur la « Shadow Method », utilisé au département de physique de l'université de Jyväskylä [Den-98]

### IV.3.3 Dans le cas de réactions de fission

Les ions radioactifs produits dans la cible par réaction de fission sont émis isotropiquement dans l'espace. Ils peuvent donc être facilement séparés du faisceau primaire. Plusieurs guides d'ions, adaptés aux réactions de fission, ont été conçus dans ce sens [Äys-87] [Äys-89][Tas-89][Ast-92]. En effet, pour ces guides d'ions, le faisceau primaire ne traverse pas l'hélium servant à arrêter les produits de fission, ces derniers devant traverser une épaisseur de matière avant de pouvoir atteindre la chambre d'arrêt contenant l'hélium. Le guide d'ions, adapté aux réactions de fission, du département de physique de l'université de Jyväskylä [Den-97] est représenté dans la figure IV-10.



**Fig. IV-10** – Guide d'ions, adapté aux réactions de fission, du département de physique de l'université de Jyväskylä [Den-97]

L'adaptation de la technique IGISOL au cas particulier des réactions de fission permet donc de s'affranchir de l'effet plasma, lié au dépôt d'énergie du faisceau primaire dans l'hélium. Des expériences récentes [Äys-01] ont montré, cependant, la présence d'un effet plasma, lié au dépôt d'énergie des fragments de fission dans l'hélium.

Les mesures effectuées [Den-97] avec ce type de guide d'ions ont montré une efficacité de l'ordre de 0,01 %. Ce résultat médiocre s'explique par le fait que la quantité d'hélium présente dans la chambre d'arrêt n'est pas suffisante pour arrêter efficacement les fragments de fission. En effet, ces derniers sont émis avec une énergie de l'ordre du MeV par nucléon et seulement 1 % des fragments pénétrant dans la chambre d'arrêt sont arrêtés dans l'hélium avant de heurter une paroi du guide d'ions.

Une solution serait d'augmenter la pression d'hélium dans la chambre d'arrêt, mais cela diminuerait le seuil, en intensité du faisceau primaire, d'apparition de l'effet plasma, lié au dépôt d'énergie des fragments de fission. Cette solution ne présente donc pas trop d'intérêt.

Une deuxième solution serait d'augmenter considérablement le volume de la chambre d'arrêt. Dans ce cas, c'est le temps d'évacuation moyen de l'hélium de la chambre d'arrêt qui

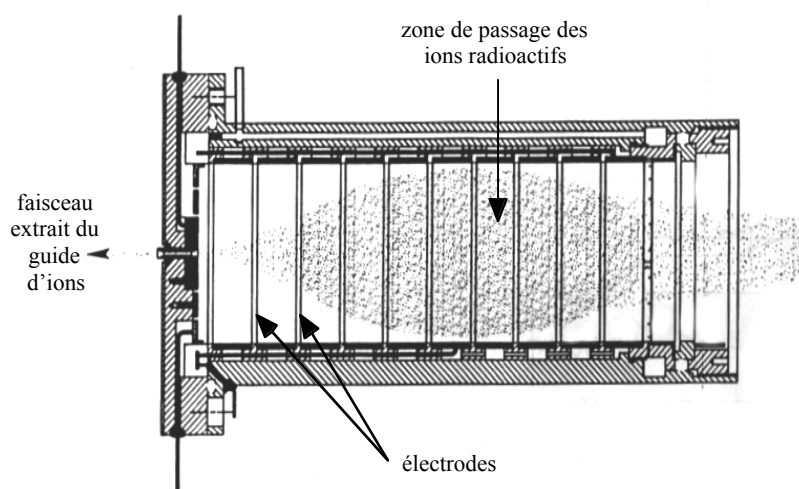
augmenterait considérablement et pénaliserait ainsi le système. Cependant, cette solution est envisageable, si un champ électrique est ajouté pour accélérer les fragments de fission afin de les guider plus rapidement vers la sortie du guide d'ions.

#### **IV.3.4 Dans le cas de réactions de fragmentation**

Dans le cas particulier des réactions de fragmentation du projectile, les ions radioactifs produits ont une énergie très élevée (de l'ordre de plusieurs dizaines de MeV par nucléon). Ils doivent donc être ralentis, jusqu'à une énergie de l'ordre de quelques MeV par nucléon, avant de pouvoir envisager de les arrêter dans un guide d'ions. Malgré un ralentissement et en raison de la dispersion en énergie, des ions radioactifs produits, provoquée par ce ralentissement, des guides d'ions particuliers doivent être conçus. En effet, des chambres d'arrêt dont la longueur doit être de l'ordre de plusieurs dizaines de centimètres et possédant une pression d'hélium de l'ordre de quelques bars sont nécessaires pour pouvoir arrêter ces ions radioactifs ralentis.

Le temps d'évacuation moyen de l'hélium d'un tel guide d'ions est beaucoup trop long. C'est pourquoi, l'utilisation d'un champ électrique (de l'ordre du kV/cm) est indispensable pour ces guides d'ions. De plus, dans le but d'augmenter le seuil d'apparition de l'effet plasma (seuil en intensité du faisceau primaire), il est indispensable de ne pas envoyer le faisceau primaire dans le guide d'ions. Pour cela, un séparateur de fragments doit être placé entre la cible mince, servant à produire les ions radioactifs, et le guide d'ions.

L'adaptation de la méthode IGISOL au cas particulier des réactions de fragmentation du projectile est une idée récente. Les guides d'ions associés à ce type de réaction sont actuellement à l'étude [Nol-00][Den-00][Gib-00][Sav-02]. Le dessin d'un prototype du laboratoire national d'Argonne (ANL), testé avec succès [Sav-02] pour des réactions de fusion-évaporation suivant la configuration GARIS/IGISOL (cf. partie IV.3.2) et dont les dimensions vont être adaptées aux réactions de fragmentation du projectile, est représenté dans la figure IV-11.



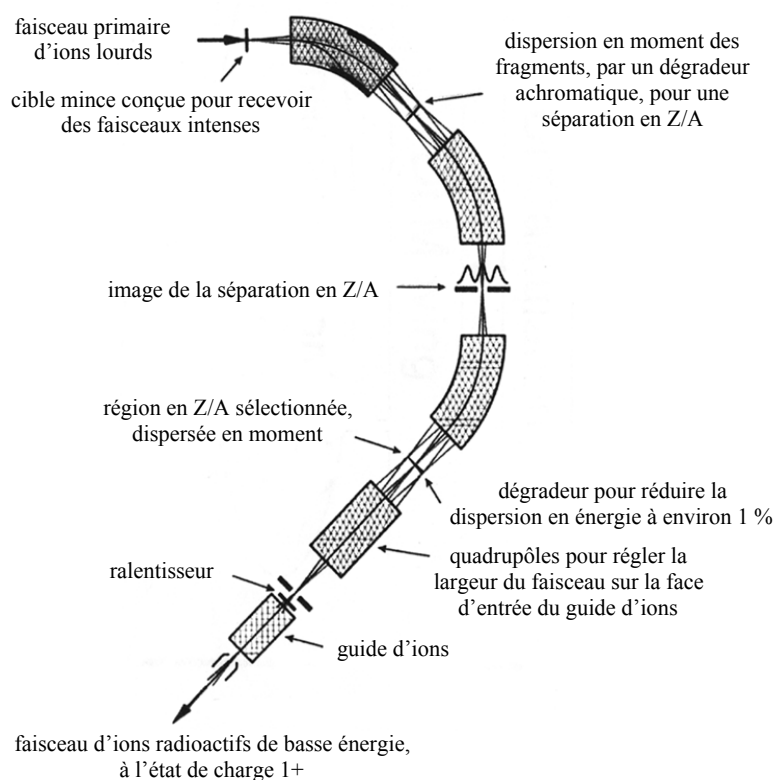
**Fig. IV-11** – Dessin d'un prototype du laboratoire national d'Argonne (ANL) testé avec succès [Sav-02] pour des réactions de fusion-évaporation et dont les dimensions vont être adaptée aux réactions de fragmentation du projectile

La longueur choisie pour le nouveau prototype, adaptée aux réactions de fragmentation du projectile, est de 1,25 mètre. Ce guide d'ions est équipé d'un champ électrique alternatif, pour la focalisation des ions radioactifs dans le guide d'ions, et d'un champ électrique continu, pour accélérer et guider les ions radioactifs vers la sortie du guide d'ions.

Le GANIL est particulièrement intéressé par l'adaptation de la technique IGISOL au cas particulier des réactions de fragmentation du projectile. Il est d'ailleurs engagé dans un programme de recherche européen, appelé « Ion Catcher », en association avec d'autres laboratoires (LMU à Munich, GSI à Darmstadt, l'université de Giessen, l'université de Jyväskylä, KVI à Groningen, K.U. à Leuven, l'université de Mainz et l'université de Varsovie). Le but de ce programme est de, entre autres, développer des techniques de guide d'ions adaptées à des ions radioactifs, de haute énergie, issus de la fragmentation du projectile.

Une partie du travail de cette thèse est consacrée à l'étude de la technique IGISOL, dans le but de concevoir, à court terme, un guide d'ions prototype pour le GANIL.

Deux grands projets, à long terme, d'installations de recherche en physique nucléaire, GSI new Facility [Hen-02] et RIA (Rare Isotope Accelerator) [Ria-1], ont intégré, dans leur projet d'équipements, la technique IGISOL adaptée au cas particulier des réactions de fragmentation du projectile. Une vue schématique de la partie « séparateur de fragments - guide d'ions » du projet américain (RIA) est présentée dans la figure IV-12.



**Fig. IV-12** – Vue schématique de la partie « séparateur de fragments – guide d'ions » du projet RIA [Ria-2]

Le projet prévoit de séparer le faisceau primaire du faisceau d'ions radioactifs d'intérêt, grâce à un séparateur de fragments (deux premiers dipôles magnétiques). Un deuxième couple de dipôles magnétiques permet de réduire la dispersion en énergie du faisceau d'ions radioactifs d'intérêt. Le ralentisseur, juste avant le guide d'ions, permet de réduire l'énergie du faisceau d'ions radioactifs de quelques dizaines à quelques MeV par nucléon. Le guide d'ions schématisé correspond au prototype, de 1,25 mètre, de l'ANL [Sav-02].

### **IV.3.5 Bilan fonctionnel qualitatif de quelques cas particuliers**

#### **IV.3.5.1 Guide d'ions fonctionnant à l'hélium liquide**

Ce nouveau concept est apparu très récemment. Pour ce guide d'ions particulier, c'est de l'hélium liquide qui est utilisé à la place de l'hélium gazeux. Cela permet de réduire considérablement la taille du guide d'ions (quelques millimètres suffisent, par exemple, pour thermaliser des fragments de fission). Dans l'hélium liquide, les atomes d'hélium s'agrègent autour d'une impureté ionisée pour former un ensemble appelé « snowball » [Tak-95]. L'idée est d'extraire de l'hélium liquide les ions radioactifs, présents sous la forme de snowballs, par un champ électrique.

Les premiers résultats hors-ligne, obtenus à Jyväskylä [Hua-02], ont montré que les ions radioactifs peuvent facilement être déplacés dans l'hélium liquide par un champ électrique. Ces résultats ont également montré qu'il est possible de les extraire du liquide, puisqu'une efficacité d'extraction du liquide de 36 % a pu être obtenue.

#### **IV.3.5.2 Guide d'ions couplé à une ionisation par résonance laser**

Apparue au début des années 90 [Qam-92][Osh-92], cette association entre un guide d'ions et un laser est appelée IGLIS (Ion Guide Laser Ion Source) [Ver-97]. Un schéma simplifié de cette technique est représenté dans la figure IV-13 [Kud-96]. Le système ressemble en tous points à un guide d'ions classique, à la différence près qu'un faisceau laser traverse le guide d'ions juste avant la sortie des éléments radioactifs. Le but de ce faisceau est d'ioniser, par résonance laser [Let-87][Hur-88], les éléments radioactifs qui se sont neutralisés dans le guide d'ions. La résonance laser étant un phénomène sélectif en  $Z$ , ce guide d'ions permet de choisir les éléments radioactifs neutralisés qui seront ionisés, à condition de disposer d'un laser permettant d'ioniser l'élément désiré. A partir de cette technologie, des faisceaux, par exemple, de Ba [Osh-92], de Co, Ni et Rh [Kud-96] et de Ru [Dup-00] ont pu être obtenus.

Des mesures réalisées à KU Leuven [Kud-96] ont montré une efficacité de l'ordre de 7 % pour des réactions de fusion-évaporation et de 0,2 % pour des réactions de fission. De nouvelles investigations ont été très récemment effectuées [Kud-01][Kud-02-a], dont des mesures d'efficacité par implantation, dans le guide d'ions, d'un faisceau de  $^{58}\text{Ni}$  de 185 MeV. Des efficacités allant jusqu'à 10 % ont été obtenues [Kud-02-b].

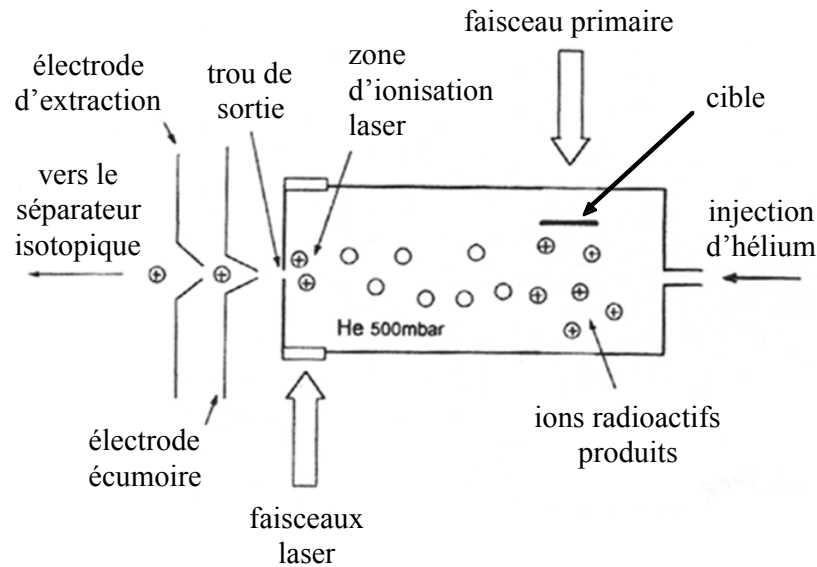


Fig. IV-13 – Schéma simplifié de la technique IGLIS (Ion Guide Laser Ion Source) [Kud-96]

## **IV.4 Reproduction du comportement des ions dans un guide d'ions : réalisation du Code MI-GI-CHEMIN**

### **IV.4.1 Nécessité et choix d'un Code**

Une justification théorique quantitative, et non qualitative comme c'est le cas actuellement, des efficacités expérimentales obtenues, pour chacun des guides d'ions conçus, n'a pas encore été réalisée. La complexité des processus à l'intérieur du guide d'ions (flux gazeux, réactions avec les impuretés, recombinaisons à 3 corps, etc) en est principalement la cause. Pourquoi, par exemple, pour les guides d'ions adaptés aux réactions de fusion-évaporation induites par des faisceaux primaires d'ions légers, l'efficacité totale est-elle de l'ordre de 1 à 10 %, alors qu'elle a atteint 45 %, pour un prototype testé récemment à l'ANL [Sav-02], pour des réactions de fusion-évaporation induites par un faisceau primaire d'ions lourds ? Il est donc nécessaire de concevoir un Code, afin de reproduire le comportement des ions dans un guide d'ions et d'obtenir une justification théorique quantitative des efficacités mesurées.

#### **IV.4.1.1 Simulation du flux gazeux**

En l'absence de champs électriques, les ions thermalisés dans l'hélium se déplacent à la vitesse de l'écoulement gazeux. La conception d'un Code, pour reproduire le comportement de l'écoulement de l'hélium dans un guide d'ions, est donc d'un très grand intérêt pour les guides d'ions ne possédant pas de champs électriques à l'intérieur.

Depuis quelques années, plusieurs laboratoires se sont intéressés à l'écoulement de l'hélium dans un guide d'ions. Plusieurs Codes ont été réalisés. Ils sont basés sur la résolution de l'équation de Navier-Stokes régissant l'écoulement des fluides. La conception de ces Codes permet d'avoir accès à des grandeurs telles que :

- la vitesse d'un atome d'hélium suivant l'endroit où il se trouve dans un guide d'ions.
- la pression suivant l'endroit concerné du guide d'ions.

La confrontation entre ces différents Codes est actuellement à l'étude dans les différents laboratoires concernés.

Ce type de Code permet d'avoir accès aux propriétés des atomes d'hélium. La vitesse des ions étant assimilée à la vitesse des atomes d'hélium, il permet donc d'obtenir le temps de sortie du guide d'ions.

Cependant, ce type de Code ne permet pas de quantifier les pertes associées au processus de diffusion. Il ne peut pas prendre, également, en considération les différentes réactions qui peuvent avoir lieu entre les ions et les impuretés présentes. Or, la prise en compte de ces réactions est indispensable, car elles sont responsables d'une partie des pertes observées. A ces réactions s'ajoutent celles de recombinaison à trois corps.

#### **IV.4.1.2 Simulation du mouvement des ions dans un guide d'ions incluant des champ électriques**

Dans le cas où des champs électriques sont utilisés à l'intérieur du guide d'ions, le mouvement des ions est contrôlé, théoriquement, par le champ électrique et par le flux gazeux. Cependant, dans le cas où la vitesse de l'écoulement gazeux, dans le guide d'ions, est faible en comparaison avec la vitesse moyenne induite par le champ électrique, ce sont les forces électriques qui contrôlent essentiellement le mouvement des ions. Des comparaisons entre des approximations de ces deux vitesses sont effectuées en **annexe E**.

Pour les prototypes de guide d'ions incluant des champs électriques (cf. partie IV.3.4), les diamètres des guides d'ions sont au minimum de l'ordre de quelques centimètres et les champs électriques appliqués, de l'ordre de  $10^5$  V/m. Des comparaisons ont été effectuées, dans le tableau E-1 de l'**annexe E**, entre une approximation de la vitesse de l'écoulement gazeux dans ce type de guide d'ions et une approximation de la vitesse moyenne induite par des champs électriques de cet ordre :

- le champ électrique contrôle le mouvement des ions dans la zone de diamètre de quelques centimètres.
- par contre, au niveau du trou de sortie du guide d'ions, le mouvement des ions est contrôlé par le flux gazeux et par le champ électrique.

La conception d'un Code simulant le mouvement des ions dans un guide d'ions, rempli d'hélium et incluant des champs électriques, sans prendre en considération le flux gazeux, est donc d'un très grand intérêt pour les guides d'ions prototypes, conçus ou en projet, incluant des champs électriques. Pour la zone du trou de sortie du guide d'ions, le temps de passage des ions est légèrement surestimé par un tel Code. Cependant, ce temps de passage est négligeable en comparaison avec celui passé dans le reste du guide d'ions. C'est pourquoi le temps de sortie du guide d'ions, obtenu à partir de ce type de Code, est proche de la réalité.



Deux approches différentes sont possibles pour un tel Code reproduisant le mouvement des ions dans un guide d'ions rempli d'hélium et incluant des champs électriques.

#### α) Approche macroscopique

Cette approche macroscopique consiste à déterminer le mouvement d'un ion, dans le champ électrique et dans le gaz, par l'intermédiaire de sa mobilité, suivant la loi :

$$\vec{V}_{\text{ion}} = \mu \frac{\vec{E}}{P_g} \quad (\text{IV-20})$$

où

- $\mu$  représente la mobilité de l'ion.
- $P_g$ , la pression d'hélium dans le guide d'ions.
- $E$ , le champ électrique.
- $V_{\text{ion}}$ , la vitesse de l'ion.

Une telle approche ne permet pas de quantifier les pertes associées au processus de diffusion. Elle ne permet pas, également, de quantifier les pertes associées aux différentes réactions qui peuvent avoir lieu, à l'intérieur du guide d'ions, comme, par exemple, les réactions entre les ions et les impuretés présentes.

Des Codes basés sur une approche macroscopique ont déjà été réalisés par différents laboratoires. Ces Codes sont établis à partir du logiciel SIMION, permettant de créer une géométrie de guide d'ions et un champ électrique, statique et dynamique, à l'intérieur du guide d'ions, à lequel est ajouté une approche macroscopique du déplacement des ions dans l'hélium et dans le champ électrique.

#### β) Approche microscopique

Cette approche microscopique consiste à déterminer le mouvement d'un ion, dans le champ électrique, à partir de la relation fondamentale de la dynamique (RFD). La fréquence des collisions avec les atomes d'hélium est déterminée à partir du libre parcours moyen de l'ion dans l'hélium. La nature des collisions (diffusion élastique ou inélastique) et les caractéristiques de la diffusion sont déterminées par la méthode de Monté-Carlo.

Un tel Code permet de quantifier les pertes associées au processus de diffusion. Il permet également de quantifier les pertes associées aux réactions qui peuvent avoir lieu, dans le guide d'ions, entre les ions et les impuretés présentes, en introduisant le libre parcours moyen associé à une concentration donnée d'impuretés et des sections efficaces de diffusion élastique et inélastique.

La prise en compte des réactions de recombinaison à trois corps est plus délicate, car elle nécessite de connaître les concentrations locales en électrons.

#### **IV.4.1.3 Combinaison des simulations de flux et de mouvement des ions**

Cette combinaison, d'un Code de simulation du flux gazeux et d'un Code de simulation du mouvement des ions, a pour but de pouvoir reproduire le comportement des ions dans n'importe quel type de guide d'ions (incluant des champs électriques ou pas).

Elle consiste à cartographier la vitesse des atomes d'hélium, ainsi que la pression d'hélium, pour l'ensemble du guide d'ions, à partir du Code de simulation du flux gazeux, et à injecter ces données dans le deuxième Code qui reconstitue le mouvement des ions, par une approche microscopique, dans un guide d'ions incluant des champs électriques, en prenant en considération les caractéristiques des atomes d'hélium.

Une approche macroscopique a été réalisée. La mobilité des ions est déduite d'un code de simulation du flux gazeux (VARJET) et injectée dans le code SIMION.

Ce type de Code permet d'avoir accès au temps de sortie du guide d'ions. L'approche microscopique permet également de quantifier les pertes associées au processus de diffusion et celles associées aux réactions entre les ions et les impuretés présentes dans le guide d'ions.

#### **IV.4.1.4 Choix d'un Code**

En ce qui concerne le GANIL, le but est de construire un guide d'ions adapté aux réactions de fragmentation du projectile (cf. partie IV.3.4). Ce sera donc un guide d'ions de grande taille, équipé d'un champ électrique interne de l'ordre de  $10^5$  V/m.

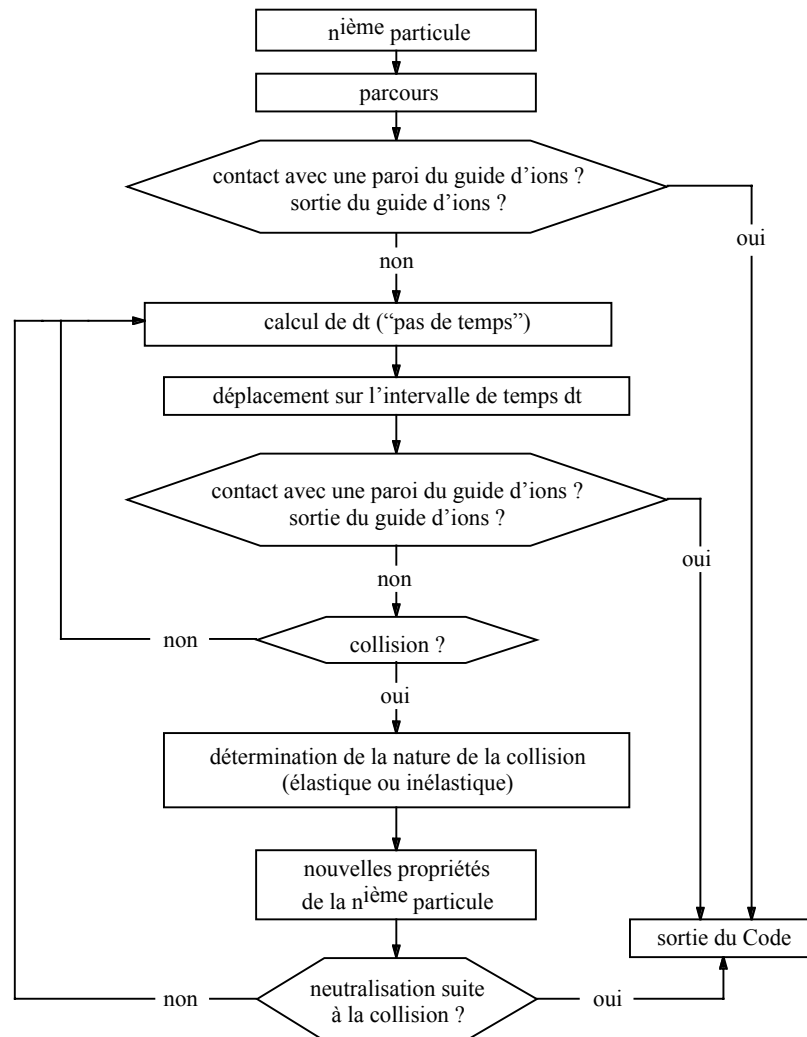
Par conséquent, l'utilisation d'un Code de reproduction du mouvement des ions dans un guide d'ions incluant des champs électriques, sans prendre en considération le flux gazeux, est suffisant pour obtenir un temps de sortie, du guide d'ions, correct. Cependant, nous voudrions connaître les pertes associées au processus de diffusion et celles associées aux réactions entre les ions et les impuretés présentes dans le guide d'ions. Nous avons donc décidé de concevoir un Code, basé sur une approche microscopique, simulant le mouvement des ions dans un guide d'ions, rempli d'hélium et d'une concentration donnée d'impuretés, incluant des champs électriques, sans prendre en considération le flux gazeux. Nous avons également décidé d'ajouter la possibilité d'inclure des champs magnétiques, afin de voir leur influence sur le mouvement des ions dans le guide d'ions.

Dans le cas du guide d'ions prototype envisagé pour le GANIL, les ions sont produits par réaction de fragmentation du projectile et ralentis juste avant leur introduction dans le guide d'ions. Ils pénètrent dans le guide d'ions avec une énergie de l'ordre du MeV par nucléon. Nous avons donc décidé de prendre en charge, dans le Code, la perte d'énergie des ions pendant le parcours, de haute énergie à basse énergie, dans le guide d'ions. Nous avons également décidé d'ajouter la possibilité de prendre en considération les dispersions, en énergie, en angle et en position, liées à l'utilisation d'un ralentisseur solide juste avant l'introduction dans le guide d'ions.

Enfin, nous avons décidé de donner au Code le nom de MI-GI-CHEMIN pour « Mouvement des Ions dans un Guide d'Ions Contenant de l'Hélium, des champs Electriques et Magnétiques et des Impuretés Neutralisantes ».

#### **IV.4.2 Vision générale du Code MI-GI-CHEMIN : conception d'un organigramme**

Pour concevoir un Code, il est nécessaire d'avoir une vision globale de son architecture. Cette architecture doit permettre de répondre aux exigences d'un cahier des charges prédéfini. Dans notre cas particulier, le cahier des charges a été établi précédemment (cf. partie IV.4.1.4). L'organigramme du Code MI-GI-CHEMIN est présenté dans la figure IV-14.



**Fig. IV-14** – Organigramme du Code MI-GI-CHEMIN de reproduction du mouvement des ions dans un guide d'ions, rempli d'hélium et d'une concentration donnée d'impuretés, incluant des champs électriques et magnétiques

La première partie du Code gère la perte d'énergie des ions, dans le guide d'ions, pendant le parcours de haute énergie à basse énergie. La prise en charge de cette perte d'énergie permet de gérer le déplacement des ions suivant la relation fondamentale de la dynamique et donc permet de considérer la présence de champs électriques et magnétiques. Le parcours complet est constitué d'un très grand nombre de déplacements élémentaires. Le temps d'un déplacement élémentaire est déterminé par une variable appelée « pas de temps ».

Nous verrons, par la suite, comment est déterminé ce pas de temps. La longueur du parcours est alignée sur la valeur du parcours contenue dans des tables [Nor-70]. La seconde partie du Code est basée sur une analyse séquentielle. Chaque séquence est constituée d'un déplacement et d'une éventuelle collision :

- un déplacement est basé sur la relation fondamentale de la dynamique. Le temps du déplacement est déterminé par la variable « pas de temps ».
- une éventuelle collision avec un atome d'hélium est déterminée, au regard du libre parcours moyen, suivant la distance parcourue depuis la dernière collision. Les collisions avec les différentes variétés d'impuretés présentes dans le guide d'ions sont également déterminées suivant la distance parcourue depuis la dernière collision avec chacune des variétés d'impuretés présentes, au regard du libre parcours moyen associé à chaque variété d'impuretés.

La trajectoire des ions dans le guide d'ions est mémorisée au cours de l'exécution du Code. A la fin de son exécution, la quantité d'ions perdus par contact sur les parois du guide d'ions est connue, ainsi que la quantité d'ions perdus par réaction avec une impureté présente dans le guide d'ions. Les lieux où se produisent ces événements sont également connus.

Le temps est mémorisé tout au long de la trajectoire des ions dans le guide d'ions. Le temps de sortie du guide d'ions est disponible à la fin de l'exécution du Code.

### **IV.4.3 Description théorique du Code MI-GI-CHEMIN**

Ce Code a été programmé en langage C, en utilisant, au maximum, une allocation de mémoire dynamique afin de minimiser la taille du Code compilé.

#### **IV.4.3.1 Gestion des ions dans le Code**

Une structure « particule » a été définie dans le Code. Cette structure permet de prendre en charge, individuellement, les ions. Sa définition, en langage C, est présentée dans la partie 1 de l'**annexe F**. Plusieurs « drapeaux indicateurs » sont associés à un ion. Ils permettent de savoir si l'ion est sorti du guide d'ions, s'il a heurté une paroi ou encore, s'il s'est neutralisé au cours d'une réaction avec une impureté présente dans le guide d'ions.

#### **IV.4.3.2 Propriétés initiales des ions**

Une partie du Code détermine les propriétés des ions (position, vitesse, état de charge, etc) à leur entrée dans le guide d'ions. Les modèles semi-empiriques, ayant servi à établir ces propriétés, sont présentés dans cette partie.

##### **$\alpha$ ) Détermination de l'état de charge moyen des ions**

La détermination de l'état de charge moyen des ions est basée sur le modèle semi-empirique de Ziegler, Biersack et Littmark [Zie-85]. Ce modèle donne l'état de charge moyen

des ions après la traversée d'un milieu solide (dans notre cas, le ralentisseur). Dans ce modèle, l'état de charge moyen des ions est exprimé par la relation suivante :

$$\bar{q} = q_f Z_{\text{ion}} \quad (\text{IV-21})$$

où

- $\bar{q}$  représente l'état de charge moyen des ions.
- $q_f$ , le degré d'ionisation des ions, appelé également « ionisation fractionnée ».
- $Z_{\text{ion}}$ , le nombre de protons des ions.

L'ionisation fractionnée est déterminée à partir de la « vitesse effective »,  $y_r$ , des ions par la relation empirique suivante :

$$q_f = 1 - e^{\left(0,803 \cdot y_r^{0,3} - 1,3167 \cdot y_r^{0,6} - 0,38157 \cdot y_r - 0,008983 \cdot y_r^2\right)} \quad (\text{IV-22})$$

La vitesse effective, malgré son appellation, n'est pas une vitesse. Elle représente une modélisation théorique de l'ionisation fractionnée dans un cas bien précis, établi par Ziegler, Biersack et Littmark, que nous allons maintenant expliciter.

Pour un atome basé sur le modèle de Thomas-Fermi, la vitesse des électrons de l'atome est proportionnelle à  $Z^{2/3}$ , où  $Z$  représente le nombre de protons de l'atome. Bohr a suggéré que la vitesse des électrons des ions joue un rôle primordial dans le degré d'épluchage des ions, c'est-à-dire, pour la valeur de l'ionisation fractionnée. Il a établi un critère d'épluchage des ions basé sur le rapport de la vitesse de l'ion sur la vitesse des électrons de l'ion. Ziegler, Biersack et Littmark ont repris ce critère d'épluchage de Bohr, mais en considérant que c'est le rapport de la comparaison entre la vitesse de l'ion et la vitesse des électrons du milieu traversé sur la vitesse des électrons de l'ion qui joue un rôle critique. En appliquant ce critère à un atome basé sur le modèle de Thomas-Fermi, la vitesse effective, c'est-à-dire, la modélisation théorique de l'ionisation fractionnée, est exprimée de la manière suivante :

$$y_r = \frac{v_r}{v_0 \cdot Z_{\text{ion}}^{2/3}} \quad (\text{IV-23})$$

où

- $v_0$  représente la vitesse de Bohr, c'est-à-dire, la vitesse des électrons dans le modèle de Bohr (soit  $2,19 \cdot 10^6 \text{ m.s}^{-1}$ ).
- $v_r$ , la comparaison entre la vitesse de l'ion et la vitesse des électrons du milieu traversé. La vitesse résultante est appelée « vitesse relative ».

La vitesse relative a été calculée par Ziegler, Biersack et Littmark [Zie-85]. Ils ont obtenu des expressions dépendant de la vitesse de l'ion,  $v_{\text{ion}}$ , et de la vitesse de Fermi,  $v_F$ , du milieu traversé, soit :

$$\text{Pour } v_{\text{ion}} \geq v_F : \quad v_r = v_{\text{ion}} \left( 1 + \frac{v_F^2}{5 \cdot v_{\text{ion}}^2} \right) \quad (\text{IV-24})$$

$$\text{Pour } v_{\text{ion}} < v_F : \quad v_r = \frac{3v_F}{4} \left( 1 + \frac{2}{3} \frac{v_{\text{ion}}^2}{v_F^2} - \frac{1}{15} \left( \frac{v_{\text{ion}}}{v_F} \right)^4 \right) \quad (\text{IV-25})$$

La vitesse de Fermi est identique pour deux atomes ayant le même nombre de protons. La vitesse de Fermi, pour chaque élément, est disponible dans la référence [Zie-85]. Pendant l'exécution du Code, la vitesse de Fermi est lue dans le fichier « Vfermi.h ».

La détermination de l'état de charge moyen des ions, par le modèle semi-empirique de Ziegler, Biersack et Littmark, n'est valable que si la vitesse effective des ions est supérieure ou égale à 0,13. Cela correspond à des énergies de l'ordre de quelques dizaines de keV par nucléon. Or, de telles énergies sont largement inférieures à l'énergie initiale des ions au moment de leur entrée dans le guide d'ions, donc cette limite n'est pas du tout restrictive. Ce seuil de validité détermine l'énergie initiale minimale possible qui peut être fixée, par l'utilisateur, au démarrage du Code. Cependant, l'utilisateur du Code a la possibilité de fixer lui-même l'état de charge moyen des ions au moment de leur entrée dans le guide d'ions.

La partie du Code qui détermine l'état de charge moyen des ions est présentée dans la partie 2 de l'**annexe F**.

#### β) Détermination de la dispersion en état de charge des ions

La dispersion en état de charge des ions est donnée par le modèle semi-empirique de Nikolaev et Dmitriev [Nik-68]. D'après ce modèle, la largeur à mi-hauteur,  $\Delta q$ , de la dispersion en état de charge des ions, après la traversée d'un solide (dans notre cas, le ralentisseur), est déterminée par la relation suivante :

$$\Delta q = 0,5 \sqrt{\bar{q} \left( 1 - \left( \frac{\bar{q}}{Z_{\text{ion}}} \right)^{1/0,6} \right)} \quad (\text{IV-26})$$

où

- $\bar{q}$  représente l'état de charge moyen des ions (cf. partie  $\alpha$  de la partie IV.4.3.2).
- $Z_{\text{ion}}$ , le nombre de protons des ions.

L'utilisateur du Code a la possibilité de fixer lui-même la dispersion en état de charge des ions au moment de leur entrée dans le guide d'ions.

La partie du Code qui détermine la dispersion en état de charge des ions est présentée dans la partie 2 de l'**annexe F**.

γ) Détermination de la dispersion en énergie des ions

La détermination de la dispersion en énergie des ions est basée sur le modèle semi-empirique de Yang, O'Connor et Wang [Yan-91]. Ce modèle établit la dispersion en énergie des ions après la traversée d'un milieu solide ou gazeux. D'après ce modèle, la largeur à mi-hauteur de la dispersion en énergie des ions est donnée par la relation suivante :

$$\Delta E = \Delta E_B \sqrt{\gamma^2 \frac{\Delta E_{CHU}^2}{\Delta E_B^2} + \frac{\Delta(\Delta E)^2}{\Delta E_B^2}} \quad (\text{IV-27})$$

où

- $\Delta E_B$  représente la dispersion en énergie établit par la théorie de Bohr [Boh-48], considérant les électrons comme un gaz d'électrons libres.
- $\Delta E_{CHU}$ , la dispersion en énergie obtenue par Chu [Chu-77] en considérant une densité d'électrons basée sur le modèle de Hartree-Fock-Slater.
- $\Delta(\Delta E)$ , une dispersion en énergie supplémentaire liée aux effets de corrélations.
- $\gamma$ , la charge effective fractionnée déterminée par le modèle semi-empirique de Ziegler, Biersack et Littmark [Zie-85]. Cette charge effective fractionnée, différente du degré d'ionisation des ions (c'est-à-dire, de l'ionisation fractionnée), est un terme crucial, car le pouvoir d'arrêt électronique des ions est directement proportionnel au carré de ce terme.

D'après le modèle semi-empirique de Ziegler, Biersack et Littmark, la charge effective fractionnée est exprimée de la manière suivante :

$$\gamma = \frac{\bar{q}}{Z_{\text{ion}}} + \left(1 - \frac{\bar{q}}{Z_{\text{ion}}}\right) \frac{1}{2} \left(\frac{v_0}{v_F}\right)^2 \ln \left(1 + \left(\frac{2\Lambda v_F}{a_0 v_0}\right)^2\right) \quad (\text{IV-28})$$

où

- $Z_{\text{ion}}$  représente le nombre de protons de l'ion.
- $v_0$ , la vitesse de Bohr (soit  $2,19 \cdot 10^6 \text{ m.s}^{-1}$ ).
- $a_0$ , le rayon de Bohr (soit  $5,29 \cdot 10^{-11} \text{ m}$ ).
- $\bar{q}$ , l'état de charge moyen des ions déterminé à partir du modèle semi-empirique de Ziegler, Biersack et Littmark (cf. partie  $\alpha$  de la partie IV.4.3.2).
- $v_F$ , la vitesse de Fermi du milieu traversé.
- $\Lambda$ , l'étendue spatiale de la densité de charge électronique de l'ion.

Le premier terme de la charge effective fractionnée est l'ionisation fractionnée. Ce terme représente la charge effective fractionnée pour des collisions distantes, c'est-à-dire, pour des collisions où les électrons de l'atome du milieu traversé ne pénètrent pas dans la couche électronique de l'ion. Le second terme est un terme correctif qui prend en

considération les quelques électrons de l'atome du milieu traversé qui pénètrent dans le nuage électronique de l'ion et donc, qui augmentent la perte d'énergie de l'ion.

L'étendue spatiale de la densité de charge électronique de l'ion, calculée par Ziegler, Biersack et Littmark, est définie par la relation suivante :

$$\Lambda = \frac{2a_0 \left(1 - \frac{\bar{q}}{Z_{\text{ion}}}\right)^{2/3}}{Z_{\text{ion}}^{1/3} \left[1 - \frac{1 - \frac{\bar{q}}{Z_{\text{ion}}}}{7}\right]} \quad (\text{IV-29})$$

Dans le cas particulier où l'ion est complètement épluché, l'étendue spatiale de la densité de charge électronique de l'ion est égale à 0. Dans ce cas précis, la charge effective fractionnée est égale à l'ionisation fractionnée.

La dispersion en énergie  $\Delta E_B$  établit par la théorie de Bohr [Boh-48], qui intervient dans le modèle semi-empirique de Yang, O'Connor et Wang [Yan-91], est exprimée de la manière suivante :

$$\Delta E_B^2 = 4\pi (Z_{\text{ion}})^2 Z_{\text{milieu}} \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 N_{\text{milieu}} x_0 \quad (\text{IV-30})$$

où

- $e$  représente la charge de l'électron.
- $\epsilon_0$ , la permittivité du vide.
- $Z_{\text{milieu}}$ , le nombre de protons d'un atome du milieu traversé.
- $N_{\text{milieu}}$ , le nombre d'atomes, par unité de volume, du milieu traversé.
- $x_0$ , l'épaisseur du milieu traversé.

La dispersion en énergie  $\Delta E_{\text{CHU}}$  obtenue par Chu [Chu-77] a été remplacée, dans le modèle semi-empirique de Yang, O'Connor et Wang [Yan-91], par une formule empirique qui ajuste les calculs de Chu à  $\pm 2 \%$  pour la plupart des données et à  $\pm 5 \%$  pour toutes les données. Cette formule empirique est exprimée de la manière suivante :

$$\frac{\Delta E_{\text{CHU}}^2}{\Delta E_B^2} = \frac{1}{1 + A_1 E^{A_2} + A_3 E^{A_4}} \quad (\text{IV-31})$$

où

- $E$  représente l'énergie des ions en MeV par nucléon.
- $A_1$ ,  $A_2$ ,  $A_3$  et  $A_4$ , les coefficients d'ajustement de la formule empirique de Yang, O'Connor et Wang sur les calculs de Chu. La valeur de ces coefficients dépend



uniquement du nombre de protons des atomes du milieu traversé. La liste de ces coefficients est disponible dans la référence [Yan-91]. Pendant l'exécution du Code, la valeur de ces coefficients est lue dans le fichier « Chu\_fitting.h ».

La dispersion en énergie supplémentaire  $\Delta(\Delta E)$ , liée aux effets de corrélation, est représentée par la formule empirique suivante :

$$\frac{\Delta(\Delta E)^2}{\Delta E_B^2} = \frac{Z_{\text{ion}}^{4/3}}{Z_{\text{milieu}}^{1/3}} \frac{C_1 C_3 (1 - e^{-C_4 \xi})}{(\xi - C_2)^2 + C_3^2 (1 - e^{-C_4 \xi})^2} \quad (\text{IV-32})$$

$$\text{avec} \quad \xi = \frac{E}{Z_{\text{ion}}^{3/2} \sqrt{Z_{\text{milieu}}}} \quad \text{pour un milieu traversé solide} \quad (\text{IV-33})$$

$$\text{et} \quad \xi = \frac{E}{Z_{\text{ion}}^{3/2}} \quad \text{pour un milieu traversé gazeux} \quad (\text{IV-34})$$

où

- E représente l'énergie des ions en MeV par nucléon.
- $C_1$ ,  $C_2$ ,  $C_3$  et  $C_4$ , les constantes qui ont permis d'ajuster la dispersion en énergie totale des ions sur des données expérimentales existantes [Yan-91]. La valeur de ces constantes dépend uniquement de la nature physique du milieu traversé, c'est-à-dire, cela dépend si le milieu traversé est un solide, un gaz monoatomique, ou encore, un gaz moléculaire.

La dispersion en énergie des ions, établie par le modèle semi-empirique de Yang, O'Connor et Wang, a ajusté l'ensemble des données expérimentales à leur disposition (hormis celles concernant les ions de lithium), soit 1150 points de données, avec un écart-type de 18 % [Yan-91]. Pour le cas particulier des ions de lithium, des écarts, entre le modèle et les données, jusqu'à 200 % ont été observés. Yang, O'Connor et Wang ont montré que ces écarts sont essentiellement dus à des inhomogénéités d'épaisseur du milieu traversé, dans le cas où le milieu traversé est un solide.

L'utilisateur du Code a la possibilité de fixer lui-même la dispersion en énergie des ions au moment de leur entrée dans le guide d'ions.

La partie du Code qui détermine la dispersion en énergie des ions est présentée dans la partie 3 de l'**annexe F**.

#### δ) Autres propriétés initiales des ions

L'utilisateur du Code a la possibilité de fixer la direction du vecteur vitesse des ions, ion par ion, au moment de leur entrée dans le guide d'ions. Il a également la possibilité de

fixer une direction moyenne pour les vecteurs vitesses et d'imposer une dispersion angulaire des vecteurs vitesses.

L'utilisateur du Code a la possibilité de fixer la position des ions, ion par ion, au moment du démarrage du Code. Il a également la possibilité de fixer une position moyenne des ions et d'imposer des dispersions sur la répartition géographique des ions (largeurs à mi-hauteur du faisceau d'ions).

#### **IV.4.3.3 « Géométrie » du guide d'ions et des lignes de champs électriques et magnétiques**

Dans le Code MI-GI-CHEMIN, une « géométrie » représente l'ensemble des guides d'ions dont :

- la forme est représentée par les mêmes équations paramétriques.
- les lignes de champs électriques sont représentées par les mêmes équations paramétriques.
- Les lignes de champs magnétiques sont représentées par les mêmes équations paramétriques.

Pour une « géométrie » fixée, seules les valeurs des paramètres changent, ces valeurs étant fixées par l'utilisateur au moment de l'exécution du Code. Chaque « géométrie » est symbolisée dans le Code par une valeur particulière du paramètre « type\_géométrie ».

Lorsqu'un utilisateur veut tester, à partir du Code, un nouveau type de « géométrie », il doit préalablement définir, dans le Code, une nouvelle valeur particulière du paramètre « type\_géométrie ». A cette valeur particulière, il doit associer les lignes de Code qui permettront à un utilisateur, au moment de l'exécution du Code, de fixer les valeurs des paramètres associés à ce type de « géométrie ». La définition d'une nouvelle valeur du paramètre « type\_géométrie » et des lignes de Code associées est située dans la partie « PHASE DETERMINATION GEOMETRIE » du programme principal du Code (fonction « main »). La définition des deux premières « géométries » du Code (correspondant aux deux premières valeurs du paramètre « type\_géométrie ») est présentée dans la partie 4 de l'**annexe F**.

Au moment de l'exécution du Code, la « géométrie » choisie par l'utilisateur est reconnue par un test de la valeur du paramètre « type\_géométrie ». Le Code utilise alors, quand cela est nécessaire, les fonctions spécifiques correspondant à ce type de « géométrie ». C'est pourquoi, lorsqu'un nouveau type de « géométrie » est créé, le Code doit être modifié à chaque endroit du programme principal où la valeur du paramètre « type\_géométrie » est testée. Il s'agit tout simplement d'ajouter, à ces endroits, la nouvelle valeur possible du paramètre « type\_géométrie » et d'ajouter les lignes de Code qui font appel, suivant l'endroit du Code concerné, à une, ou plusieurs, des trois nouvelles fonctions suivantes qui sont spécifiques à la nouvelle « géométrie » :

- la fonction qui détermine, à partir de la position spatiale d'un ion, l'intensité et la direction du champ électrique à cette position.

- la fonction qui détermine, à partir de la position spatiale d'un ion, l'intensité et la direction du champ magnétique à cette position.
- la fonction qui détermine, à partir de la position spatiale d'un ion, si cet ion touche la paroi du guide d'ions où s'il sort du guide d'ions.

Les trois nouvelles fonctions, spécifiques à la nouvelle « géométrie », doivent être programmées dans le Code. Il est préférable, pour la facilité de lecture et de modification du Code, de placer chacune de ces nouvelles fonctions à la suite des fonctions équivalentes déjà existantes.

Les trois fonctions spécifiques à la première « géométrie » du Code (correspondant à la première valeur du paramètre « type\_géométrie ») sont présentées dans la partie 5 de l'annexe F.

#### **IV.4.3.4 Détermination du parcours des ions, de haute énergie à basse énergie**

La valeur du parcours des ions, de haute énergie à basse énergie, est déterminée, dans le Code, à partir des tables de parcours de Northcliffe et Schilling [Nor-70]. Ces tables de parcours sont mémorisées dans un fichier différent pour chacun des éléments (par exemple, « Carbone.h » pour le carbone, ou encore « Azote.h » pour l'azote). Les fichiers « Elément.h » ont, pour l'instant, été créés pour seulement quelques éléments. Plus précisément, pour les éléments compris entre le lithium et le sodium, lithium et sodium inclus, et pour le molybdène. Les noms des fichiers « Elément.h » sont eux-mêmes mémorisés dans le fichier « CorrespondanceR\_Z\_A.h », qui indique également pour quel isotope de l'élément la valeur du parcours est valable. Lorsque l'ion considéré ne correspond pas à l'isotope contenu dans les tables de parcours, le bon parcours est déduit par la relation suivante [Nor-70] :

$$R_{\text{ion}} = R_{\text{tables}} \frac{A_{\text{ion}}}{A_{\text{tables}}} \quad (\text{IV-35})$$

où

- $R_{\text{ion}}$  représente le parcours de l'ion considéré.
- $R_{\text{tables}}$ , le parcours de l'élément, de même nature (même nombre de protons) et de même énergie par nucléon, présent dans les tables.
- $A_{\text{ion}}$ , le nombre de nucléons de l'ion considéré.
- $A_{\text{tables}}$ , le nombre de nucléons de l'élément, de même nature, présent dans les tables.

Dans les fichiers « Elément.h », les valeurs du parcours de l'élément, ayant un nombre  $A_{\text{tables}}$  de nucléons, sont indiquées, en  $\text{mg}/\text{cm}^2$ , pour chaque valeur entière, en keV/nucléon, d'énergie initiale comprise entre 500.A keV et 5.A MeV. Le seuil de 500.A keV impose, pour le fonctionnement du Code, une énergie minimale des ions, au moment de leur entrée dans le guide d'ions, de 500.A keV. Cette valeur minimale est plutôt restrictive. C'est pourquoi, la plage d'énergie initiale possible sera bientôt modifiée pour pouvoir prendre en considération

des énergies initiales allant de 10.A keV jusqu'à 10.A MeV. Cette modification est très simple à effectuer, car seulement trois lignes du Code doivent être changées, et cela, dans la fonction « parcours\_tables » :

- la ligne « i=500; » doit être remplacée par la ligne « i=10; ».
- la ligne « while (decouvert==0 && i<5001) » doit être remplacée par la ligne « while (decouvert==0 && i<10001) ».
- la ligne « printf("L'énergie %d en keV/A de l'ion %d est hors de 0.5-5 MeV/A !\n", » doit être remplacée par la ligne « printf("L'énergie %d en keV/A de l'ion %d est hors de 0.01-10 MeV/A !\n", ».

A partir du moment où cette modification est effectuée, les fichiers « Element.h » doivent être immédiatement modifiés pour contenir les valeurs du parcours de l'élément, ayant un nombre  $A_{\text{tables}}$  de nucléons, correspondant à chaque valeur entière, en keV/nucléon, d'énergie initiale comprise entre 10.A keV et 10.A MeV. La validité des valeurs de parcours utilisées pendant le fonctionnement du Code en dépend. A plus long terme, les fichiers « Element.h » devront être créés pour la totalité des éléments.

Les fichiers « Element.h » existant contiennent des valeurs de parcours des tables de Northcliffe et Schilling. Il est cependant possible de remplir ces fichiers avec d'autres valeurs de parcours (issues de mesures expérimentales, par exemple).

La fonction du Code qui détermine le parcours des ions est présentée dans la partie 6 de l'annexe F.

#### **IV.4.3.5 Détermination du « pas de temps » pendant le parcours**

La perte d'énergie des ions, pendant le parcours, est prise en charge dans le Code. Cela permet de gérer le déplacement des ions, dans les champs électriques et magnétiques, à partir de la relation fondamentale de la dynamique. Le parcours, dont la valeur a été déterminée précédemment (cf. partie IV.4.3.4), est constitué d'un très grand nombre de déplacements élémentaires. Le temps de chaque déplacement élémentaire est défini à partir de la variable « pas de temps ». Pour chaque nouveau déplacement à effectuer, une nouvelle valeur du « pas de temps » est déterminée. Sa détermination est basée sur la relation fondamentale de la dynamique. Le principe de sa détermination est détaillé dans cette partie.

##### **α) Accélération liée au pouvoir d'arrêt**

La dérivation, par rapport au temps, de l'énergie de l'ion permet d'obtenir la relation suivante :

$$\frac{dv}{dt} = \frac{1}{mv} \frac{dE}{dt} = \frac{1}{m} \frac{dE}{ds} \quad (\text{IV-36})$$

où

- v représente la vitesse de l'ion.

- $m$ , sa masse.
- $E$ , son énergie.
- $s$ , l'abscisse curviligne associée à sa trajectoire.

En appliquant cette relation au cas particulier de l'accélération liée au pouvoir d'arrêt, la relation suivante est obtenue :

$$\left( \frac{dv}{dt} \right)_{\text{pouvoir d'arrêt}} = - \frac{c^2}{m_n c^2} N_{\text{He}} \frac{S_n + S_e}{A_{\text{ion}}} \quad (\text{IV-37})$$

où

- $N_{\text{He}}$  représente le nombre d'atomes d'hélium par unité de volume (en  $\text{m}^{-3}$ ).
- $m_n c^2$ , l'énergie de masse d'un nucléon (en MeV).
- $c$ , la vitesse de la lumière (en  $\text{m.s}^{-1}$ ).
- $A_{\text{ion}}$ , le nombre de nucléons de l'ion.
- $S_e$ , le pouvoir d'arrêt électronique (en  $\text{MeV.m}^2$ ).
- $S_n$ , le pouvoir d'arrêt nucléaire (en  $\text{MeV.m}^2$ ).

Ziegler, Biersack et Littmark ont conçu un modèle semi-empirique qui détermine les pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire dans les solides [Zie-85]. Les données expérimentales, de pouvoirs d'arrêt mesurés dans les gaz, se font très rares. Face à ces lacunes, le programme européen « Ion Catcher » (cf. partie IV.3.4), dont le GANIL est un des participants, prévoit une campagne de mesures du pouvoir d'arrêt dans les gaz, à GSI et au GANIL, en utilisant le détecteur Maya.

Pour déterminer le mouvement des ions, pendant le parcours, dans les champs électriques et magnétiques, nous avons utilisé, dans la relation fondamentale de la dynamique, les pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire déterminés par le modèle semi-empirique de Ziegler, Biersack et Littmark.

#### β) Détermination du pouvoir d'arrêt électronique

D'après le modèle semi-empirique de Ziegler, Biersack et Littmark [Zie-85], le pouvoir d'arrêt électronique est déterminé par la relation suivante :

$$S_e = S_H \cdot Z_{\text{ion}}^2 \cdot \gamma^2 \quad (\text{IV-38})$$

où

- $Z_{\text{ion}}$  représente le nombre de protons de l'ion.
- $\gamma$ , la charge effective fractionnée définie par l'équation IV-28 (cf. partie  $\gamma$  de la partie IV.4.3.2).

- $S_H$ , le pouvoir d'arrêt électronique pour un ion d'hydrogène de même énergie par nucléon que l'ion considéré.

Le modèle semi-empirique de détermination du pouvoir d'arrêt électronique, pour un ion d'hydrogène [Zie-77], dépend de la valeur de son énergie :

Pour  $1 \text{ keV/nucléon} \leq E \leq 10 \text{ keV/nucléon}$  :

$$S_H = A_1 \sqrt{E} \quad (\text{IV-39})$$

Pour  $10 \text{ keV/nucléon} < E < 1000 \text{ keV/nucléon}$  :

$$S_H = \frac{A_2 E^{0,45} \cdot \frac{A_3}{E} \ln \left( 1 + \frac{A_4}{E} + A_5 E \right)}{A_2 E^{0,45} + \frac{A_3}{E} \ln \left( 1 + \frac{A_4}{E} + A_5 E \right)} \quad (\text{IV-40})$$

Pour  $1000 \text{ keV/nucléon} \leq E \leq 100 \cdot 10^3 \text{ keV/nucléon}$  :

$$S_H = \frac{A_6}{\beta^2} \left[ \ln \left( \frac{A_7 \beta^2}{1 - \beta^2} \right) - \beta^2 - \sum_{i=0}^4 A_{i+8} (\ln(E))^i \right] \quad (\text{IV-41})$$

$$\text{avec} \quad \beta^2 = \frac{2E}{m_n c^2} \quad (\text{IV-42})$$

où

- $m_n c^2$  représente l'énergie de masse d'un nucléon en keV.
- $S_H$ , le pouvoir d'arrêt électronique, pour un ion d'hydrogène, en  $10^{-25} \text{ MeV.m}^2$ .
- $E$ , l'énergie de l'ion d'hydrogène en keV/nucléon (valeur de l'énergie par nucléon de l'ion considéré, en keV/nucléon).
- $A_1, A_2, A_3, A_4, A_5, A_6, A_7, A_8, A_9, A_{10}, A_{11}$  et  $A_{12}$ , les coefficients de détermination du pouvoir d'arrêt électronique pour un ion d'hydrogène. Ces coefficients dépendent uniquement du nombre de protons des atomes du milieu traversé. Dans notre cas, ce sont les coefficients pour l'hélium qui nous intéressent. Ces coefficients sont disponibles dans la référence [Zie-77].

Le modèle semi-empirique de détermination du pouvoir d'arrêt électronique, pour un ion d'hydrogène, à haute énergie (cf. équation IV-41) est basé sur la formule de Bethe [Bet-53]. Le modèle semi-empirique à basse énergie (cf. équation IV-39) est basé sur un calcul utilisant le modèle atomique statistique de Thomas-Fermi. Pour des énergies transitoires (cf. équation IV-40), le modèle est basé sur le produit de deux termes divisé par la somme de ces deux mêmes termes. Un des deux termes est basé sur la formule de Bethe. Le second terme, sur une approximation proche du modèle semi-empirique à basse énergie.

Le modèle semi-empirique de détermination du pouvoir d'arrêt électronique pour un ion quelconque (cf. équation IV-38), établi par Ziegler, Biersack et Littmark, a été testé pour des milliers de données expérimentales et s'est montré exact à environ 10 % près [Zie-85].

#### γ) Détermination du pouvoir d'arrêt nucléaire

D'après le modèle théorique de Ziegler, Biersack et Littmark [Zie-85], le pouvoir d'arrêt nucléaire est déterminé par la relation suivante :

$$S_n = \frac{\pi(a_U)^2 E}{\epsilon} \frac{4A_{\text{ion}} A_{\text{milieu.traversé}}}{(A_{\text{ion}} + A_{\text{milieu.traversé}})^2} S_n(\epsilon) \quad (\text{IV-43})$$

où

- $S_n(\epsilon)$  représente le pouvoir d'arrêt nucléaire réduit (grandeur sans unité).
- $S_n$ , le pouvoir d'arrêt nucléaire (en MeV.m<sup>2</sup>).
- $E$ , l'énergie de l'ion (en MeV).
- $\epsilon$ , l'énergie réduite (grandeur sans unité).
- $A_{\text{ion}}$ , le nombre de nucléons de l'ion.
- $A_{\text{milieu.traversé}}$ , le nombre de nucléons des atomes du milieu traversé.
- $a_U$ , l'étendue spatiale universelle de la densité de charge électronique (en m).

L'énergie réduite est définie par la relation suivante :

$$\epsilon = \frac{4\pi\epsilon_0}{Z_{\text{ion}} Z_{\text{milieu.traversé}} e^2} \frac{A_{\text{milieu.traversé}}}{A_{\text{ion}} + A_{\text{milieu.traversé}}} a_U E \quad (\text{IV-44})$$

où

- $Z_{\text{ion}}$  représente le nombre de protons de l'ion.
- $Z_{\text{milieu.traversé}}$ , le nombre de protons des atomes du milieu traversé.
- $\epsilon_0$ , la permittivité du vide.

Le pouvoir d'arrêt nucléaire réduit est défini par la relation suivante :

$$S_n(\epsilon) = \epsilon \int_0^\infty \sin^2 \left( \frac{\pi}{2} - \int_{x_{\min}}^\infty \frac{b \cdot dx}{x^2 \left[ 1 - \frac{\Phi_U(x)}{x\epsilon} - \left( \frac{b}{x} \right)^2 \right]} \right) d(b^2) \quad (\text{IV-45})$$

où

- $b$  représente le paramètre d'impact réduit, c'est-à-dire, le paramètre d'impact divisé par l'étendue spatiale universelle de la densité de charge électronique.
- $x$  représente la distance interatomique réduite, c'est-à-dire, la distance interatomique divisé par l'étendue spatiale universelle de la densité de charge électronique.
- $x_{\min}$ , la distance interatomique réduite minimale, liée à la distance minimale d'approche.
- $\Phi_U(x)$ , la fonction d'étendue spatiale universelle du potentiel interatomique.

L'étendue spatiale universelle de la densité de charge électronique et la fonction d'étendue spatiale universelle du potentiel interatomique, proposées par Ziegler, Biersack et Littmark, sont définies par les relations suivantes :

$$a_U = \frac{0,8854.a_0}{Z_{\text{ion}}^{0,23} + Z_{\text{milieu.traversé}}^{0,23}} \quad (\text{IV-46})$$

$$\Phi_U(x) = 0,18175e^{-3,1998x} + 0,50986e^{-0,94229x} + 0,28022e^{-0,4029x} + 0,028171e^{-0,20162x} \quad (\text{IV-47})$$

où  $a_0$  représente le rayon de Bohr. En utilisant ce modèle universel, Ziegler, Biersack et Littmark ont démontré que le pouvoir d'arrêt nucléaire peut être déterminé par les relations suivantes :

$$S_n = \frac{8,462.10^{-25}.Z_{\text{ion}}Z_{\text{milieu.traversé}}A_{\text{ion}}}{(A_{\text{ion}} + A_{\text{milieu.traversé}})\left(Z_{\text{ion}}^{0,23} + Z_{\text{milieu.traversé}}^{0,23}\right)} S_n(\epsilon) \quad (\text{IV-48})$$

$$\text{et} \quad \epsilon = \frac{32,53.A_{\text{milieu.traversé}}}{Z_{\text{ion}}Z_{\text{milieu.traversé}}(A_{\text{ion}} + A_{\text{milieu.traversé}})\left(Z_{\text{ion}}^{0,23} + Z_{\text{milieu.traversé}}^{0,23}\right)} E \quad (\text{IV-49})$$

$$\text{avec} \quad \text{pour } \epsilon \leq 30 : \quad S_n(\epsilon) = \frac{\ln(1 + 1,1383.\epsilon)}{2[\epsilon + 0,01321.\epsilon^{0,21226} + 0,19593.\epsilon^{0,5}]} \quad (\text{IV-50})$$

$$\text{et} \quad \text{pour } \epsilon > 30 : \quad S_n(\epsilon) = \frac{\ln(\epsilon)}{2\epsilon} \quad (\text{IV-51})$$

où

- $E$  représente l'énergie de l'ion en keV.
- $S_n$ , le pouvoir d'arrêt nucléaire en MeV.m<sup>2</sup>.

#### δ) Accélération liée aux champs électriques

L'accélération provoquée par les champs électriques est exprimée par la relation suivante :



$$\left( \frac{d\vec{v}}{dt} \right)_{\text{champs.électriques}} = \frac{q}{m} \vec{E} \quad (\text{IV-52})$$

où

- $q$  représente la charge de l'ion.
- $m$ , sa masse.
- $\vec{v}$ , sa vitesse.
- $\vec{E}$ , le champ électrique au point où se situe l'ion.

#### ε) Accélération liée aux champs magnétiques

L'accélération liée à la présence de champs magnétiques est exprimée de la manière suivante :

$$\left( \frac{d\vec{v}}{dt} \right)_{\text{champs.magnétiques}} = \frac{q}{m} \vec{v} \wedge \vec{B} \quad (\text{IV-53})$$

où  $\vec{B}$  représente le champ magnétique au point où se situe l'ion.

#### ξ) Application de la relation fondamentale de la dynamique

L'association de l'accélération liée au pouvoir d'arrêt (cf. équation IV-37 dans la partie α de la partie IV.4.3.5) avec celle liée aux champs électriques (cf. équation IV-52) et celle liée aux champs magnétiques (cf. équation IV-53) donne la relation fondamentale de la dynamique appliquée à l'ion.

La projection de cette relation fondamentale de la dynamique sur les trois axes d'un repère cartésien orthonormé donne les expressions suivantes :

$$\frac{dv_x}{dt} = \frac{q}{m} (E_x + v_y B_z - v_z B_y) - \frac{c^2}{m_n c^2} N_{\text{He}} \frac{S_e + S_n}{A_{\text{ion}}} \frac{v_x}{v} \quad (\text{IV-54})$$

$$\frac{dv_y}{dt} = \frac{q}{m} (E_y + v_z B_x - v_x B_z) - \frac{c^2}{m_n c^2} N_{\text{He}} \frac{S_e + S_n}{A_{\text{ion}}} \frac{v_y}{v} \quad (\text{IV-55})$$

$$\frac{dv_z}{dt} = \frac{q}{m} (E_z + v_x B_y - v_y B_x) - \frac{c^2}{m_n c^2} N_{\text{He}} \frac{S_e + S_n}{A_{\text{ion}}} \frac{v_z}{v} \quad (\text{IV-56})$$

où

- $v_x$ ,  $v_y$  et  $v_z$  représente les trois composantes de la vitesse de l'ion.
- $E_x$ ,  $E_y$  et  $E_z$ , les trois composantes du champ électrique au point où se situe l'ion.
- $B_x$ ,  $B_y$  et  $B_z$ , les trois composantes du champ magnétique au point où se situe l'ion.

- $A_{ion}$ , le nombre de nucléons de l'ion.
- $q$ , sa charge.
- $m$ , sa masse.
- $c$ , la vitesse de la lumière.
- $m_n c^2$ , l'énergie de masse d'un nucléon.
- $N_{He}$ , le nombre d'atomes d'hélium par unité de volume.
- $S_e$ , le pouvoir d'arrêt électronique.
- $S_n$ , le pouvoir d'arrêt nucléaire.

#### η) Dédution du « pas de temps » pendant le parcours

Au tout début du Code, dans la zone de définition des constantes (cf. partie 1 de l'**annexe F**), la constante « Fraction\_acceptable » est définie numériquement. La définition théorique, dans le Code, de cette constante est la suivante :

$$\text{Fraction\_acceptable} = \frac{|v_k(t + \Delta t) - v_k(t)|}{v_k(t)} \quad (\text{IV-57})$$

où

- $k$  représente  $x$ ,  $y$  ou  $z$ .
- $\Delta t$ , le « pas de temps ».

« Fraction\_acceptable » représente donc la variation relative de vitesse acceptable, sur chacun des axes du repère orthonormé, pendant un déplacement élémentaire. Plus la valeur de « Fraction\_acceptable » est élevée, plus le Code est rapide, mais moins le Code reproduit la réalité. Plus sa valeur est faible, moins le Code est rapide, mais plus le Code reproduit la réalité. Un bon compromis pour la valeur de « Fraction\_acceptable » est entre 1 % et 1 ‰.

En utilisant cette constante et la projection de la relation fondamentale de la dynamique sur les trois axes du repère (cf. équations IV-54, IV-55 et IV-56), trois valeurs de « pas de temps » sont déduites. Les expressions de ces trois « pas de temps » sont les suivantes :

$$\Delta t_x = \frac{\text{Fraction\_acceptable} \cdot v_x}{\left| \frac{q}{m} (E_x + v_y B_z - v_z B_y) - \frac{c^2}{m_n c^2} N_{He} \frac{S_e + S_n}{A_{ion}} \frac{v_x}{v} \right|} \quad (\text{IV-58})$$

$$\Delta t_y = \frac{\text{Fraction\_acceptable} \cdot v_y}{\left| \frac{q}{m} (E_y + v_z B_x - v_x B_z) - \frac{c^2}{m_n c^2} N_{He} \frac{S_e + S_n}{A_{ion}} \frac{v_y}{v} \right|} \quad (\text{IV-59})$$

$$\Delta t_z = \frac{\text{Fraction\_acceptable} \cdot v_z}{\left| \frac{q}{m} (E_z + v_x B_y - v_y B_x) - \frac{c^2}{m_n c^2} N_{\text{He}} \frac{S_e + S_n}{A_{\text{ion}}} \frac{v_z}{v} \right|} \quad (\text{IV-60})$$

où  $\Delta t_x$ ,  $\Delta t_y$  et  $\Delta t_z$  représentent les « pas de temps » déduits en appliquant la relation fondamentale de la dynamique suivant, respectivement, l'axe des x, l'axe des y et l'axe des z.

Il reste une valeur de « pas de temps » à déterminer. C'est celle associée à la distance que l'ion doit encore parcourir pour effectuer l'intégralité du parcours, la valeur du parcours étant déduite des tables de Northcliffe et Schilling [Nor-70] (cf. partie IV.4.3.4). La valeur du dernier « pas de temps » est donc la suivante :

$$\Delta t_{\text{parcours}} = \frac{\text{parcours} - \text{distance\_parcourue}}{v} \quad (\text{IV-61})$$

où

- $v$  représente la vitesse de l'ion.
- $\text{parcours}$ , la valeur du parcours des tables de Northcliffe et Schilling.
- $\text{distance\_parcourue}$ , la distance déjà parcourue par l'ion depuis le début du parcours. Cette distance est mise à jour au fur et à mesure du déplacement de l'ion.

La valeur du « pas de temps » retenue, pour le déplacement élémentaire qui va être effectué, est la plus faible valeur des quatre « pas de temps » déterminés précédemment. Cela permet de s'assurer que la variation relative de vitesse, sur chacun des trois axes du repère orthonormé, est inférieure ou égale à la fraction acceptable. Le « pas de temps », correspondant à un déplacement élémentaire, est donc le suivant :

$$\Delta t = \inf \{ \Delta t_x, \Delta t_y, \Delta t_z, \Delta t_{\text{parcours}} \} \quad (\text{IV-62})$$

La partie du Code qui détermine le « pas de temps » pendant le parcours est présentée dans la partie 7 de l'**annexe F**.

#### **IV.4.3.6 Déplacement des ions pendant le parcours**

En utilisant le « pas de temps » déterminé précédemment (cf. partie IV.4.3.5), un déplacement élémentaire est effectué. Les propriétés de l'ion qui se déplace sont alors modifiées dans le Code.

Les coordonnées de l'ion deviennent les suivantes :

$$x \equiv x + v_x \cdot \Delta t \quad (\text{IV-63})$$

$$y \equiv y + v_y \cdot \Delta t \quad (\text{IV-64})$$

$$z \equiv z + v_z \cdot \Delta t \quad (\text{IV-65})$$

Les coordonnées de la vitesse de l'ion deviennent les suivantes :

$$v_x \equiv v_x + \left( \frac{q}{m} (E_x + v_y B_z - v_z B_y) - \frac{c^2}{m_n c^2} N_{\text{He}} \frac{S_e + S_n}{A_{\text{ion}}} \frac{v_x}{v} \right) \Delta t \quad (\text{IV-66})$$

$$v_y \equiv v_y + \left( \frac{q}{m} (E_y + v_z B_x - v_x B_z) - \frac{c^2}{m_n c^2} N_{\text{He}} \frac{S_e + S_n}{A_{\text{ion}}} \frac{v_y}{v} \right) \Delta t \quad (\text{IV-67})$$

$$v_z \equiv v_z + \left( \frac{q}{m} (E_z + v_x B_y - v_y B_x) - \frac{c^2}{m_n c^2} N_{\text{He}} \frac{S_e + S_n}{A_{\text{ion}}} \frac{v_z}{v} \right) \Delta t \quad (\text{IV-68})$$

Les modèles permettant de déterminer l'état de charge moyen dans les gaz sont valables seulement pour des énergies telles que l'ionisation fractionnée (cf. partie  $\alpha$  de la partie IV.4.3.2) soit environ inférieure à 0,3. Cela correspond environ à des énergies inférieures à 100.A keV. Pour pouvoir mettre à jour la charge de l'ion à plus haute énergie, le modèle semi-empirique de Ziegler, Biersack et Littmark [Zie-85] (cf. partie  $\alpha$  de la partie IV.4.3.2), conçu pour obtenir l'état de charge moyen pendant la traversée d'un solide, est utilisé.

La variable « temps » associée à l'ion est incrémentée de  $\Delta t$ . La distance parcourue par l'ion est modifiée de la manière suivante :

$$\text{distance\_parcourue} \equiv \text{distance\_parcourue} + v \cdot \Delta t \quad (\text{IV-69})$$

A la fin de chaque déplacement, le Code vérifie si l'ion a heurté une paroi ou s'il est sorti du guide d'ions.

Le parcours est effectué en réalisant une multitude de déplacements élémentaires (avec une détermination de  $\Delta t$  à chaque nouveau déplacement). En fin de parcours, le Code bascule dans la phase de fonctionnement séquentielle (cf. partie IV.4.2). Chaque séquence est constituée d'un déplacement élémentaire et d'une éventuelle collision.

#### **IV.4.3.7 Détermination du « pas de temps » pendant la phase séquentielle**

Comme pendant le parcours, le « pas de temps » est déterminé à partir de la relation fondamentale de la dynamique. Le principe de sa détermination est décrit dans cette partie.

##### **$\alpha$ ) Application de la relation fondamentale de la dynamique**

L'association de l'accélération liée aux champs électriques (cf. équation IV-52 dans la partie  $\delta$  de la partie IV.4.3.5) et de celle liée aux champs magnétiques (cf. équation IV-53 dans la partie  $\epsilon$  de la partie IV.4.3.5) donne la relation fondamentale de la dynamique

appliquée à l'ion. La projection de cette relation fondamentale de la dynamique sur les trois axes d'un repère cartésien orthonormé donne les expressions suivantes :

$$\frac{dv_x}{dt} = \frac{q}{m} (E_x + v_y B_z - v_z B_y) \quad (\text{IV-70})$$

$$\frac{dv_y}{dt} = \frac{q}{m} (E_y + v_z B_x - v_x B_z) \quad (\text{IV-71})$$

$$\frac{dv_z}{dt} = \frac{q}{m} (E_z + v_x B_y - v_y B_x) \quad (\text{IV-72})$$

### β) Dédution du « pas de temps »

En utilisant la relation fondamentale de la dynamique et la variation relative de vitesse, acceptable sur chacun des axes du repère orthonormé, représentée par « Fraction\_acceptable » (cf. équation IV-57 dans la partie η de la partie IV.4.3.5), trois valeurs de « pas de temps » sont déduites. Les expressions de ces trois « pas de temps » sont les suivantes :

$$\Delta t_x = \frac{\text{Fraction\_acceptable} \cdot v_x}{\left| \frac{q}{m} (E_x + v_y B_z - v_z B_y) \right|} \quad (\text{IV-73})$$

$$\Delta t_y = \frac{\text{Fraction\_acceptable} \cdot v_y}{\left| \frac{q}{m} (E_y + v_z B_x - v_x B_z) \right|} \quad (\text{IV-74})$$

$$\Delta t_z = \frac{\text{Fraction\_acceptable} \cdot v_z}{\left| \frac{q}{m} (E_z + v_x B_y - v_y B_x) \right|} \quad (\text{IV-75})$$

D'autres valeurs de « pas de temps » sont à déterminer. Le « pas de temps » associé au libre parcours moyen dans l'hélium et les pas de temps associés aux concentrations des différentes variétés d'impuretés présentes dans l'hélium. Ces « pas de temps » sont déterminés par la relation suivante :

$$\Delta t_{\lambda_x} = \frac{\lambda_x - \text{distance\_parcourue\_X}}{v} \quad (\text{IV-76})$$

où

- X représente les particules X (les atomes d'hélium par exemple, ou encore, une variété d'impureté).

- $\lambda_X$ , le libre parcours moyen associé aux collisions avec les particules X.
- $\text{distance\_parcourue\_X}$ , la distance parcourue par l'ion depuis sa dernière collision avec une particule X.
- $\Delta t_{\lambda_X}$ , le pas de temps associé aux particules X.

Le libre parcours moyen associé aux collisions avec les particules X est déterminé par la relation suivante :

$$\lambda_X = \frac{1}{N_X \sigma_{TX}} = \frac{M_{\text{He}} \cdot 10^6}{\rho_T P_g N_A C_X} \frac{1}{\sigma_{TX}} \quad (\text{IV-77})$$

où

- $N_X$  représente le nombre de particules X par unité de volume.
- $\sigma_{TX}$ , la section efficace totale de collision avec une particule X.
- $\rho_T$ , la masse volumique de l'hélium par unité de pression et à la température T.
- $P_g$ , la pression d'hélium.
- $N_A$ , le nombre d'Avogadro.
- $M_{\text{He}}$ , la masse molaire de l'hélium.
- $C_X$ , la concentration des particules X, relative à la concentration des atomes d'hélium, en ppm (particules par million).

Dans le cas particulier où les particules X sont les atomes d'hélium,  $C_X$  vaut  $10^6$  ppm et la section efficace totale de collision vaut :

$$\sigma_{TX} = \pi(R_{\text{He}} + R_{\text{ion}})^2 \quad (\text{IV-78})$$

où

- $R_{\text{He}}$  représente le rayon de l'atome d'hélium, soit 31 pm [Ray-1].
- $R_{\text{ion}}$ , le rayon de l'ion considéré. Dans le Code, ce rayon est remplacé par une approximation (le rayon de l'atome associé).

La valeur du « pas de temps » retenue, pour le déplacement élémentaire qui va être effectué, est la plus faible valeur des « pas de temps » déterminés précédemment, soit :

$$\Delta t = \inf \{ \Delta t_x, \Delta t_y, \Delta t_z, \Delta t_{\lambda_X} \} \quad (\text{IV-79})$$

La partie du Code qui détermine le « pas de temps » pendant la phase séquentielle est présentée dans la partie 8 de l'**annexe F**.

#### **IV.4.3.8 Déplacement des ions pendant la phase séquentielle**

Les propriétés de l'ion qui effectue un déplacement élémentaire, pendant le « pas de temps » déterminé précédemment (cf. partie IV.4.3.7), sont modifiées dans le Code.

Les coordonnées de l'ion deviennent celles établies par les équations IV-63, IV-64 et IV-65 (cf. partie IV.4.3.6). Les coordonnées de la vitesse de l'ion deviennent les suivantes :

$$v_x \equiv v_x + \frac{q}{m} (E_x + v_y B_z - v_z B_y) \Delta t \quad (\text{IV-80})$$

$$v_y \equiv v_y + \frac{q}{m} (E_y + v_z B_x - v_x B_z) \Delta t \quad (\text{IV-81})$$

$$v_z \equiv v_z + \frac{q}{m} (E_z + v_x B_y - v_y B_x) \Delta t \quad (\text{IV-82})$$

La variable « temps » associée à l'ion est incrémentée de  $\Delta t$ . Les distances parcourues par l'ion sont modifiées de la manière suivante :

$$\text{distance\_parcourue\_X} \equiv \text{distance\_parcourue\_X} + v \cdot \Delta t \quad (\text{IV-83})$$

où  $\text{distance\_parcourue\_X}$  représente la distance parcourue par l'ion depuis sa dernière collision avec une particule X (cf. partie  $\beta$  de la partie IV.4.3.7).

A la fin de chaque déplacement, le Code vérifie si l'ion a heurté une paroi ou s'il est sorti du guide d'ions. Si ce n'est pas le cas, le Code vérifie s'il y a une collision ou pas (cela a été établi pendant la détermination du « pas de temps »). Dans le cas d'une éventuelle collision, le Code en détermine les propriétés.

#### **IV.4.3.9 Détermination des propriétés de la collision**

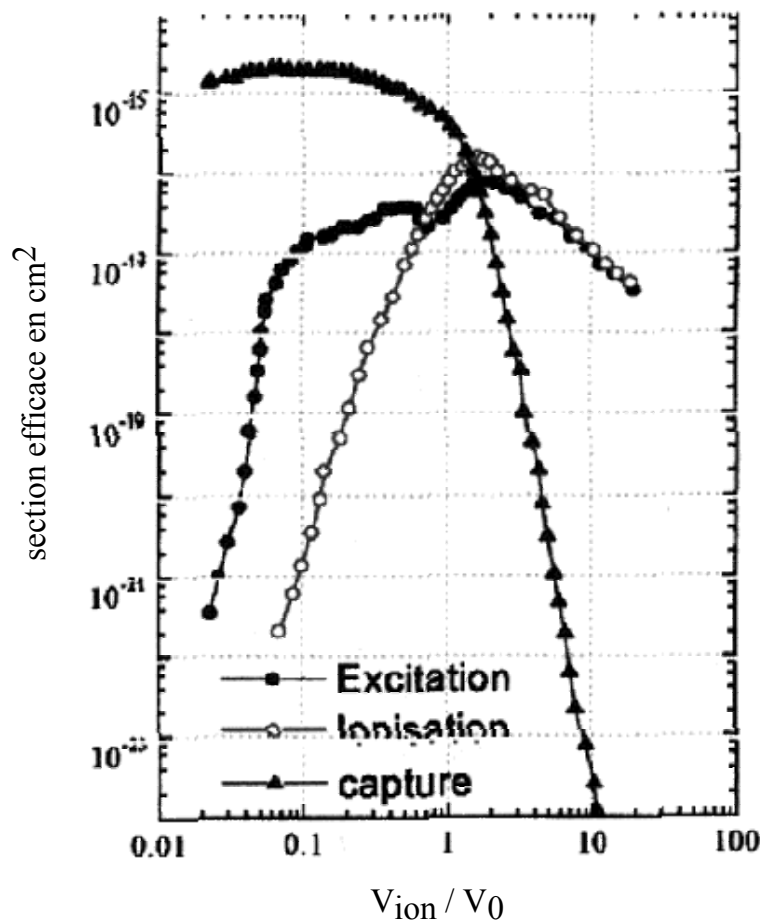
##### **$\alpha$ ) Caractère élastique ou inélastique**

Dans le cas où une collision a lieu avec une particule X, le Code détermine si c'est une collision élastique ou inélastique.  $\sigma_{\text{élastique}_X}$  représente la section efficace de diffusion élastique avec la particule X.  $\sigma_{\text{inélastique}_X}$  représente la section efficace de diffusion inélastique avec la particule X. La somme  $\sigma_{\text{élastique}_X} + \sigma_{\text{inélastique}_X}$  représente la section efficace totale de collision,  $\sigma_{TX}$ , avec une particule X (cf. partie  $\beta$  de la partie IV.4.3.7). La détermination de la nature de la collision est effectuée par la méthode de Monté-Carlo. Un nombre  $r$ , compris entre 0 et 1, est déterminé par tirage aléatoire :

- si  $r$  est inférieur ou égal à  $\frac{\sigma_{\text{inélastique}_X}}{\sigma_{\text{élastique}_X} + \sigma_{\text{inélastique}_X}}$ , la collision est inélastique.
- sinon, elle est élastique.

β) Cas particulier des diffusions inélastiques

Les sections efficaces des trois processus inélastiques (excitation, ionisation et échange de charges) sont représentées, dans la figure IV-15, pour des collisions d'ions d'hydrogène avec des atomes d'hydrogène. Pour des énergies très inférieures à l'énergie de Bohr ( $\sim 25.4$  keV), les sections efficaces d'excitation et d'ionisation sont négligeables par rapport à la section efficace d'échange de charges. D'une manière générale, quels que soient l'ion et l'atome considérés, le comportement des sections efficaces inélastiques est similaire. Par conséquent, dans le Code, seule la section efficace d'échange de charges est considérée.



**Fig. IV-15** – Sections efficaces d'excitation, d'ionisation et d'échange de charges pour des collisions d'ions d'hydrogène avec des atomes d'hydrogène.  $V_0$  représente la vitesse de Bohr, soit environ  $2.2 \cdot 10^6$  m/s

Les sections efficaces des réactions d'échange de charges avec l'hélium, utilisées dans le Code, sont extraites des tabulations de Wu, Huber et Wiesemann [Wu-88][Wu-89].

γ) Détermination des caractéristiques de la diffusion

Les caractéristiques de la diffusion sont déterminées en utilisant la formule développée par Lindhard, Nielsen et Scharff [Lin-68]. Leur formule transforme la détermination des



propriétés de la diffusion, initialement basée sur 3 variables (le paramètre d'impact, l'énergie de l'ion et l'énergie transférée), en une détermination à partir d'un seul paramètre, qu'ils ont appelé «  $t$  » et qui est proportionnel à l'énergie transférée pendant la collision et à l'énergie initiale de l'ion, et d'une fonction dépendant de  $t$ ,  $f(t^{1/2})$ . Dans ces conditions, la section efficace différentielle de diffusion,  $d\sigma$ , est déterminée par la relation suivante :

$$d\sigma = \left( -\frac{\pi a^2}{2} \right) \frac{f(t^{1/2})}{t^{3/2}} dt \quad (\text{IV-84})$$

$$\text{avec} \quad t = \varepsilon^2 \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) = T.E \left( \frac{A_x}{A_{\text{ion}}} \right) \left( \frac{a}{2Z_{\text{ion}}Z_x} \frac{4\pi\varepsilon_0}{e^2} \right)^2 \quad (\text{IV-85})$$

où

- $\varepsilon$  représente l'énergie réduite (cf. partie  $\gamma$  de la partie IV.4.3.5).
- $\theta$ , l'angle de diffusion dans le référentiel du centre de masse.
- $T$ , l'énergie transférée pendant la diffusion.
- $E$ , l'énergie initiale de l'ion.
- $A_{\text{ion}}$ , le nombre de nucléons de l'ion.
- $A_x$ , le nombre de nucléons de la particule  $X$ .
- $Z_{\text{ion}}$ , le nombre de protons de l'ion.
- $Z_x$ , le nombre de protons de la particule  $X$ .
- $a$ , l'étendue spatiale de la densité de charge électronique.

Lindhard, Nielsen et Scharff ont déterminé la section efficace différentielle de diffusion en utilisant l'étendue spatiale de la densité de charge électronique définie par le modèle de Thomas-Fermi.

Ziegler, Biersack et Littmark ont réutilisé [Zie-85] la formule générale (cf. équation IV-84) développée par Lindhard, Nielsen et Scharff et ont déterminé la section efficace différentielle de diffusion en utilisant l'étendue spatiale universelle de la densité de charge électronique (cf. équation IV-46 dans la partie  $\gamma$  de la partie IV.4.3.5). En définissant  $x$  comme étant la racine carrée de  $t$ , ils ont obtenu la fonction  $f(t^{1/2})$  suivante :

$$f(t^{1/2}) = f(x) = \frac{\ln(A)}{2B} + \frac{a.x}{2A.B} - \frac{x(\ln(A)) \left( 1 + b.c.x^{c-1} + \frac{d}{2\sqrt{x}} \right)}{2B^2} \quad (\text{IV-86})$$

$$\text{avec} \quad A = 1 + a.x \quad (\text{IV-87})$$

$$\text{et} \quad B = x + b.x^c + d\sqrt{x} \quad (\text{IV-88})$$

où

- $a$  est égal à 1,1383.
- $b$  est égal à 0,01321.

- c est égal à 0,21226.
- d est égal à 0,19593.

Dans le Code MI-GI-CHEMIN, c'est la section efficace différentielle de diffusion établie par Ziegler, Biersack et Littmark qui est utilisée. Les caractéristiques de la diffusion sont déterminées de la manière suivante :

- 1) l'énergie réduite  $\varepsilon$  est déterminée à partir de l'énergie initiale  $E$  de l'ion (cf. équation IV-49 dans la partie  $\gamma$  de la partie IV.4.3.5).
- 2) l'angle de diffusion minimal possible,  $\theta_0$ , est déterminé par la relation suivante :

$$\int_{\varepsilon}^{\varepsilon \sin\left(\frac{\theta_0}{2}\right)} \frac{d\sigma}{dx} dx = \sigma_{TX} \quad (\text{IV-89})$$

où la section efficace différentielle de diffusion est déterminée par les équations IV-84 et IV-86.  $\sigma_{TX}$  représente la section efficace totale de collision (cf. partie  $\beta$  de la partie IV.4.3.7).

- 3) la valeur de  $x$  est déterminée à partir de la méthode du « rejet de Von Neumann » : 2 nombres compris entre 0 et 1,  $r_1$  et  $r_2$ , sont tirés aléatoirement. Une abscisse  $x_t$  est déterminée par la relation suivante :

$$x_t = \varepsilon \sin\left(\frac{\theta_0}{2}\right) + \left( \varepsilon - \varepsilon \sin\left(\frac{\theta_0}{2}\right) \right) r_2 \quad (\text{IV-90})$$

Si  $\frac{\frac{d\sigma}{dx}(x_t)}{\frac{d\sigma}{dx}\left(\varepsilon \sin\left(\frac{\theta_0}{2}\right)\right)} \geq r_1$ , la valeur aléatoire  $x_t$  est validée. Sinon, un nouveau tirage est effectué.

- 4) à partir de la valeur de  $x_t$  et de l'équation IV-85, la valeur de l'angle de diffusion  $\theta$ , dans le référentiel du centre de masse, est déduite, ainsi que la valeur de l'énergie transférée,  $T$ , pendant la diffusion.

- 5) l'angle de diffusion dans le référentiel du laboratoire est déterminé par la relation suivante :

$$\Theta = \arctan\left( \frac{\sin(\theta)}{\cos(\theta) + \frac{A_{\text{ion}}}{A_X}} \right) \quad (\text{IV-91})$$

- 6) le plan dans lequel s'effectue la diffusion est déterminé par tirage aléatoire de l'angle azimutale.

La partie du Code qui détermine les caractéristiques de la diffusion est présentée dans la partie 9 de l'**annexe F**.

#### IV.4.4 Tests de validation du Code

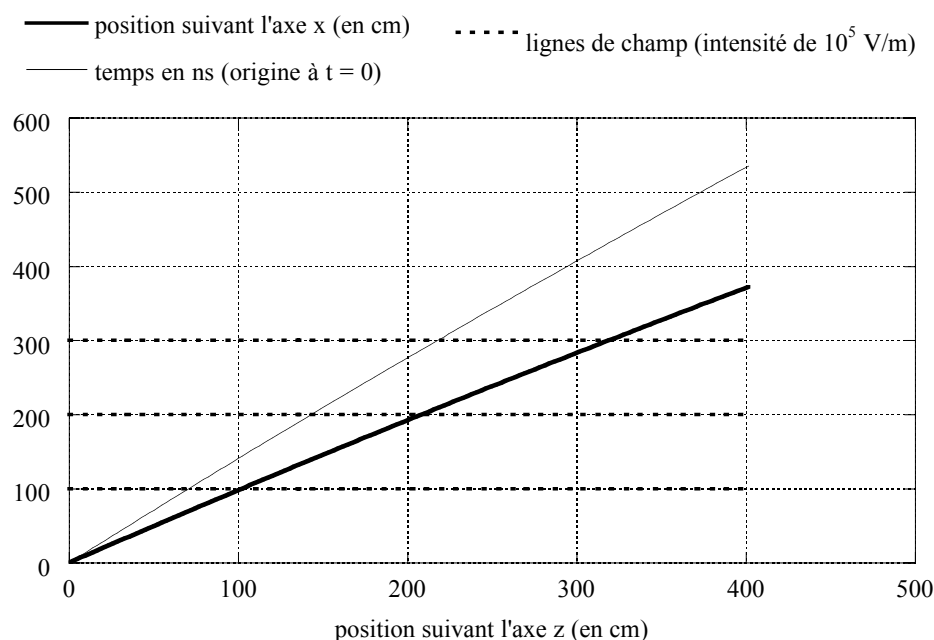
Quelques tests simples ont été effectués pour savoir si les résultats donnés par le Code sont compatibles avec la théorie.

Le déplacement des ions dans un champ électrique (vitesse acquise et distance parcourue), obtenu par le Code en prenant le paramètre « Fraction\_acceptable » égal à 1 ‰ (cf. partie  $\eta$  dans la IV.4.3.5), a été comparé avec la théorie. Une très faible pression a été choisie ( $10^{-10}$  atm) pour éviter les échanges d'énergie avec les atomes d'hélium. La plus faible énergie initiale disponible, pour l'instant, dans le Code, soit 500.A keV, a été utilisée pour un déplacement pendant un intervalle de temps  $\Delta t$  et pour un champ électrique d'intensité  $E$  donnée. Les comparaisons ont été effectuées pour deux noyaux différents et pour différentes intensités de champ électrique. Elles sont présentées dans le tableau IV-1.

ion	intensité du champ électrique	durée $\Delta t$ du déplacement (en s)	vitesse acquise théorique (en m.s <sup>-1</sup> )	vitesse acquise donnée par le Code (en m.s <sup>-1</sup> )	distance parcourue théorique (en m)	distance parcourue donnée par le Code (en m)
<sup>8</sup> B <sup>4+</sup> d'énergie initiale 500.A keV	10 <sup>5</sup> V/m	8,442. 10 <sup>-7</sup>	4,072. 10 <sup>6</sup>	4,072. 10 <sup>6</sup>	10,01	10,01
	10 <sup>4</sup> V/m	1,001. 10 <sup>-6</sup>	4,828. 10 <sup>5</sup>	4,827. 10 <sup>5</sup>	10,07	10,07
	10 <sup>3</sup> V/m	1,020. 10 <sup>-6</sup>	4,922. 10 <sup>4</sup>	4,922. 10 <sup>4</sup>	10,05	10,04
<sup>28</sup> Na <sup>6+</sup> d'énergie initiale 500.A keV	10 <sup>5</sup> V/m	3,955. 10 <sup>-7</sup>	8,178. 10 <sup>5</sup>	8,177. 10 <sup>5</sup>	4,047	4,045
	10 <sup>4</sup> V/m	1,056. 10 <sup>-6</sup>	2,184. 10 <sup>5</sup>	2,184. 10 <sup>5</sup>	10,49	10,49
	10 <sup>3</sup> V/m	1,427. 10 <sup>-6</sup>	2,950. 10 <sup>4</sup>	2,950. 10 <sup>4</sup>	14,04	14,03

**Tab. IV-1** – Comparaison de la vitesse acquise et de la distance parcourue obtenues par le Code avec celles théoriques, en prenant le paramètre « Fraction\_acceptable » égal à 1 ‰, pour un déplacement pendant un intervalle de temps  $\Delta t$ , pour deux noyaux différents et pour différentes intensités de champ électrique

La précision des résultats obtenus à partir du Code est meilleure que celle donnée par le paramètre « Fraction\_acceptable ». Des tests supplémentaires, concernant la trajectoire des ions dans un champ électrique, ont été effectués. Les caractéristiques obtenues correspondent à celles théoriques avec une précision meilleure que celle donnée par le paramètre « Fraction\_acceptable » (égal à 1 ‰). La trajectoire du <sup>28</sup>Na<sup>6+</sup>, d'énergie initiale 500.A keV, dans un champ électrique de 10<sup>5</sup> V/m et avec une vitesse initiale orientée suivant un angle de 45° par rapport à la direction des lignes de champ électrique, est représentée dans la figure IV-16. Le plus gros écart avec la théorie concerne la position suivant l'axe z (différence d'environ 0,5 ‰ en fin de trajectoire).



**Fig. IV-16** – Trajectoire du  $^{28}\text{Na}^{6+}$ , d'énergie initiale 500.A keV, dans un champ électrique de  $10^5$  V/m et avec une vitesse initiale orientée suivant un angle de  $45^\circ$  par rapport à la direction des lignes de champ électrique

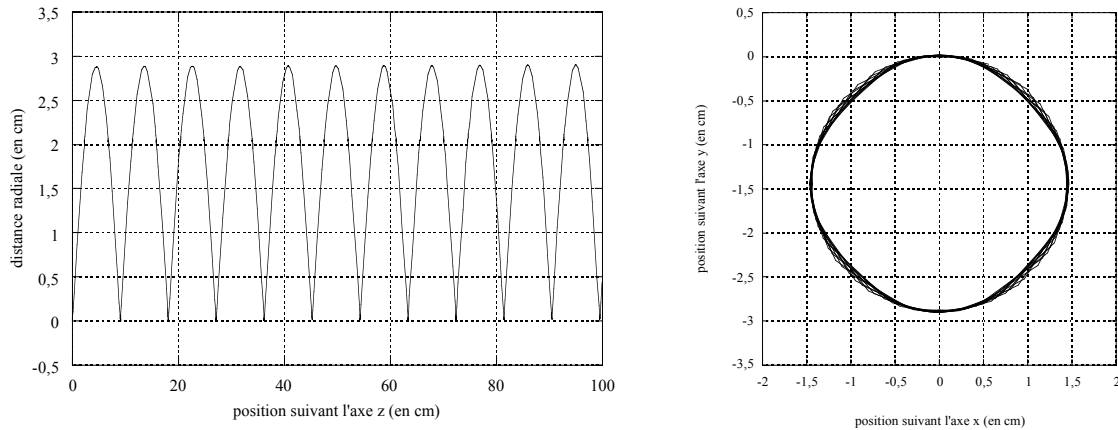
Le déplacement des ions dans un champ magnétique (vitesse et distance parcourue) a également été comparé avec la théorie. Cette dernière prévoit la conservation de l'énergie pendant le déplacement. Une très faible pression a été choisie ( $10^{-10}$  atm) pour éviter les échanges d'énergie avec les atomes d'hélium. Les résultats obtenus par le Code en prenant le paramètre « Fraction\_acceptable » égal à 1 ‰, dans un champ magnétique de 10 Teslas et pour un déplacement pendant un intervalle de temps  $\Delta t$ , sont présentés dans le tableau IV-2 pour deux noyaux différents et pour différentes énergies initiales.

ion	durée $\Delta t$ du déplacement (en s)	énergie initiale	énergie finale	distance parcourue théorique	distance parcourue obtenue par le Code
$^8\text{B}^{4+}$	$4,319 \cdot 10^{-8}$	500,0.A keV	502,3.A keV	42,43 cm	42,48 cm
$^8\text{B}^{5+}$	$2,494 \cdot 10^{-8}$	1,500.A MeV	1,505.A MeV	42,43 cm	42,46 cm
$^8\text{B}^{5+}$	$1,366 \cdot 10^{-8}$	5,000.A MeV	5,009.A MeV	42,43 cm	42,45 cm
$^{28}\text{Na}^{6+}$	$4,319 \cdot 10^{-8}$	500,0.A keV	501,0.A keV	42,43 cm	42,45 cm
$^{28}\text{Na}^{8+}$	$2,494 \cdot 10^{-8}$	1,500.A MeV	1,502.A MeV	42,43 cm	42,44 cm
$^{28}\text{Na}^{10+}$	$1,366 \cdot 10^{-8}$	5,000.A MeV	5,005.A MeV	42,43 cm	42,44 cm

**Tab. IV-2** – Caractéristiques du déplacement des ions, pendant un intervalle de temps  $\Delta t$ , dans un champ magnétique de 10 T, obtenues à partir du Code en prenant le paramètre « Fraction\_acceptable » égal à 1 ‰, pour deux noyaux différents et pour différentes énergies initiales

La conservation de l'énergie dans le champ magnétique est obtenue, dans le Code, avec une précision de quelques %, pour une distance parcourue de quelques dizaines de centimètres. La précision obtenue, pour la distance parcourue, est supérieure ou égale au %.

Des tests ont également été effectués concernant la trajectoire des ions dans le champ magnétique. La trajectoire du  ${}^8\text{B}^{4+}$ , d'énergie initiale 500.A keV, dans un champ magnétique de 10 T et avec une vitesse initiale orientée suivant un angle de  $45^\circ$  par rapport à la direction des lignes de champ magnétique, est représentée dans la figure IV-17.



**Fig. IV-17** – Trajectoire du  ${}^8\text{B}^{4+}$ , d'énergie initiale 500.A keV, dans un champ magnétique de 10 T et avec une vitesse initiale orientée suivant un angle de  $45^\circ$  par rapport à la direction des lignes de champ magnétique

Le Code reproduit avec précision le mouvement des ions dans un champ magnétique. Pour l'exemple de la figure IV-17, le rayon de courbure théorique est de 1,44 cm. Ce rayon est reproduit par le Code avec une précision meilleure que le %.

Un dernier test a été effectué. Il concerne la vitesse de déplacement des ions dans l'hélium en présence d'un champ électrique.

La théorie de la diffusion élastique indique une importance de l'asymétrie de masse, du système diffusant, pour l'amélioration de la mobilité des ions, puisque les transferts d'énergie (et, donc, la perte de vitesse des ions) sont les plus importants lorsque la diffusion élastique a lieu entre deux atomes de même masse.

Les dimensions des atomes ou molécules jouent également un rôle important, puisque la section efficace de collision, et donc le libre parcours moyen, dépend directement de ces dimensions. Plus les dimensions sont élevées, plus le libre parcours moyen est faible, plus les transferts d'énergie sont fréquents et donc, à l'échelle macroscopique, plus la mobilité est faible.

Pour une pression de 1 atm, la mobilité des ions, dans un milieu gazeux de masse atomique moyenne, est typiquement de l'ordre de  $1,0$  à  $1,5 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}$  [Kno-79]. Quelques valeurs de mobilité des ions, à 1 atm, dans différents milieux gazeux sont présentées dans le tableau IV-3.

ion	milieu gazeux	mobilité	référence
$\text{CH}_4^+$	$\text{CF}_4$	$1,1 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}$	[Rae-64]
$\text{C}_3\text{H}_8^+$	$\text{CF}_4$	$1,0 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}$	[Rae-64]
$\text{CO}_2^+$	$\text{CO}_2$	$1,1 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}$	[Bru-1][Sla-1]
$\text{CH}_4^+$	Ar	$1,9 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}$	[Sla-1]
$\text{Ar}^+$	Ar	$1,7 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}$	[Bru-1]
$\text{CO}_2^+$	Ar	$1,7 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}$	[Sla-1]
$\text{He}^+$	He	$1,3 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{V/s}$	[Bru-1]
$\text{He}_2^+$	He	$2,0 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2/\text{V/s}$	[Arx-1]

**Tab. IV-3** – Mobilité de quelques ions, dans des milieux gazeux différents, pour une pression de 1 atm

La vitesse moyenne de déplacement des ions, obtenue à partir du Code, dans un champ électrique de  $10^4 \text{ V/m}$  et pour une pression d'hélium de 1 atm, est présentée dans le tableau IV-4 pour différents ions.

ion	durée du déplacement (en s)	distance parcourue (en cm)	vitesse moyenne de déplacement (en $\text{m.s}^{-1}$ )
$^4\text{He}^+$	$1,6 \cdot 10^{-5}$	1	$6,3 \cdot 10^2$
$^7\text{Li}^+$	$4,7 \cdot 10^{-5}$	1	$2,1 \cdot 10^2$
$^{11}\text{B}^+$	$2,9 \cdot 10^{-5}$	1	$3,4 \cdot 10^2$
$^{14}\text{N}^+$	$2,2 \cdot 10^{-5}$	1	$4,6 \cdot 10^2$
$^{19}\text{F}^+$	$1,8 \cdot 10^{-5}$	1	$5,4 \cdot 10^2$
$^{23}\text{Na}^+$	$5,3 \cdot 10^{-5}$	1	$1,9 \cdot 10^2$

**Tab. IV-4** – Vitesse moyenne de déplacement de différents ions, obtenue à partir du Code, dans un champ électrique de  $10^4 \text{ V/m}$  et pour une pression d'hélium de 1 atm

En se référant aux données de mobilité du tableau IV-3, la vitesse moyenne de déplacement de  $\text{He}^+$ , dans un champ électrique de  $10^4 \text{ V/m}$ , devrait être de  $13 \text{ m.s}^{-1}$  (au lieu d'une vitesse moyenne de  $630 \text{ m.s}^{-1}$  obtenue par le Code). Nous avons vu que le Code reproduit correctement le déplacement des ions dans les champs, donc ce déplacement n'est pas à l'origine de cette différence. Par contre, au niveau des collisions, les atomes d'hélium du gaz sont considérés à l'arrêt : nous n'avons pas considéré, dans une première approche, de vitesse thermique de l'hélium, ni de vitesse d'écoulement gazeux. La vitesse thermique de l'hélium est de l'ordre de  $10^3 \text{ m.s}^{-1}$  à 300 K. Nous avons conclu qu'il est important de voir le résultat que donne le Code en remplaçant, à chaque collision, la vitesse de l'ion par sa vitesse relative par rapport à la vitesse de l'atome cible. Cette modification est parfaitement réalisable dans le Code. Elle demande seulement un peu de temps et d'investigations. En attendant, nous avons effectué les simulations du chapitre V avec la version actuelle.



# CHAPITRE V

## *En quête d'un premier prototype IGISOL au GANIL*

Ce chapitre est une description succincte des démarches de R&D effectuées dans le but de construire un premier prototype IGISOL au GANIL. Ce prototype serait installé derrière LISE3 (cf. figure I-11 dans la partie I.3.1), qui est équipé de deux dipôles permettant de sélectionner et de purifier le faisceau d'ions radioactifs, produit par fragmentation d'un faisceau primaire dans une cible mince, avant l'injection dans le guide d'ions. Le guide d'ions prototype n'a pas été construit durant la réalisation de ce travail. Par contre, une idée innovatrice a été proposée.

### **V.1 Vision théorique générale du prototype : le choix de la « géométrie »**

Le guide d'ions prototype envisagé pour le GANIL doit être adapté aux réactions de fragmentation du projectile (cf. partie IV.3.4). L'ordre de grandeur de sa longueur doit donc être, au minimum, de plusieurs dizaines de centimètres et sa largeur d'au moins quelques centimètres (il faut environ 50 cm d'hélium à 1 atm pour arrêter un ion de  $^{11}\text{Li}$  de 2.A MeV et environ 20 cm d'hélium pour arrêter ce même ion avec une énergie de 1.A MeV).

Le choix des dimensions de notre guide d'ions prototype a été orienté pour un éventuel test en-ligne au département de physique de l'université de Jyväskylä, soit une longueur de guide d'ions de 30 cm, un diamètre du trou de sortie de 1,2 mm et un diamètre du guide d'ions de 53 mm (dimensions correspondant à un prototype en projet à Jyväskylä).

Pour une telle taille de guide d'ions, le temps d'évacuation de l'hélium (cf. partie IV.1.2.1) est très long (de l'ordre de la seconde). L'utilisation de champs électriques à l'intérieur du guide d'ions est donc indispensable pour extraire rapidement les ions (en des temps de l'ordre de la milliseconde).



Le terme « géométrie » utilisé dans cette partie désigne la même chose que dans le Code MI-GI-CHEMIN (cf. partie IV.4.3.3), c'est-à-dire, la forme du guide d'ions et la forme des lignes de champs électriques et magnétiques.

La méthode IGISOL est sensible aux impuretés présentes à l'intérieur du guide d'ions (joints d'étanchéité, impuretés présentes dans les parois du guide d'ions, etc). L'utilisation de matériaux permettant d'éviter des apports en impuretés est donc souhaitée. Dans cette optique, nous proposons de construire un guide d'ions en verre. Pour la création du champ électrique à l'intérieur du guide d'ions, l'idée première est de prévoir un dépôt résistif en carbone. La polarisation des extrémités du guide permettrait de créer le champ électrique nécessaire pour guider les ions vers la sortie du système. Cette idée nouvelle n'a jamais été utilisée pour un système IGISOL. Nous verrons par la suite comment cette idée a évolué.

### **V.1.1 Forme théorique du guide d'ions prototype**

Nous avons vu dans le chapitre précédent (cf. partie IV.4.1.2), via le tableau E-1 de l'**annexe E**, que la vitesse d'écoulement de l'hélium, au niveau du trou de sortie du guide d'ions, est très rapide (autour de  $10^4$ - $10^5$  cm/s). Nous avons vu également que c'est aussi bien le flux gazeux que le champ électrique (de l'ordre de  $10^4$ - $10^5$  V/m) qui contrôle le mouvement des ions à ce niveau. Il faut donc éviter toutes perturbations du flux à proximité du trou de sortie du guide d'ions.

Dans cette optique, nous voulons éviter les ruptures d'angle à l'intérieur du guide d'ions. L'astuce utilisée est d'effectuer un rétrécissement de paroi en passant par un point d'inflexion. Mathématiquement, si l'axe z d'un repère cartésien orthonormé représente l'axe d'une conduite à géométrie cylindrique, les équations caractéristiques du rétrécissement sont :

au point d'inflexion de la conduite :

$$\frac{d^2 \text{paroi}}{dz^2}(z_{\text{point d'inflexion}}) = 0 \quad (\text{V-1})$$

au bord des deux extrémités de la zone de rétrécissement :

$$\frac{d \text{paroi}}{dz}(z_{\text{extrémités du rétrécissement}}) = 0 \quad (\text{V-2})$$

où  $\text{paroi}(z)$  représente la distance entre l'axe et la paroi de la conduite, suivant l'abscisse z, de l'axe de la conduite, concernée.

La résolution mathématique de ce problème en recherchant une solution polynomiale minimale conduit à une équation de paroi de la forme suivante :

$$\text{paroi}(z) = -\frac{D}{2} \frac{1}{L_{\text{conduite}}^5} \left( 1 - \frac{d}{D} \right) \left[ 6z^5 - 15L_{\text{conduite}} z^4 + 10L_{\text{conduite}}^2 z^3 \right] + \frac{D}{2} \quad (\text{V-3})$$

où

- D représente le diamètre de la conduite avant le rétrécissement.
- z, l'abscisse sur l'axe de la conduite. z est égal à 0 au début du rétrécissement et z est égal à  $L_{\text{conduite}}$  à la fin du rétrécissement.
- $L_{\text{conduite}}$ , la longueur de conduite, suivant l'axe z, pendant laquelle a lieu le rétrécissement.
- d, le diamètre de la conduite après le rétrécissement.

L'application de cette équation pour obtenir la forme d'un guide d'ions, à géométrie cylindrique, basé sur ce type de rétrécissement donne le résultat suivant :

$$\text{si } z \in [0, L - L_c] : \quad \text{paroi}(z) = \frac{D}{2} \quad (\text{V-4})$$

$$\text{si } z \in [L - L_c, L] :$$

$$\text{paroi}(z) = \frac{D}{2} \left[ 1 - \frac{1}{L_c^5} \left( 1 - \frac{d}{D} \right) \left[ 6(z + L_c - L)^5 - 15L_c(z + L_c - L)^4 + 10L_c^2(z + L_c - L)^3 \right] \right] \quad (\text{V-5})$$

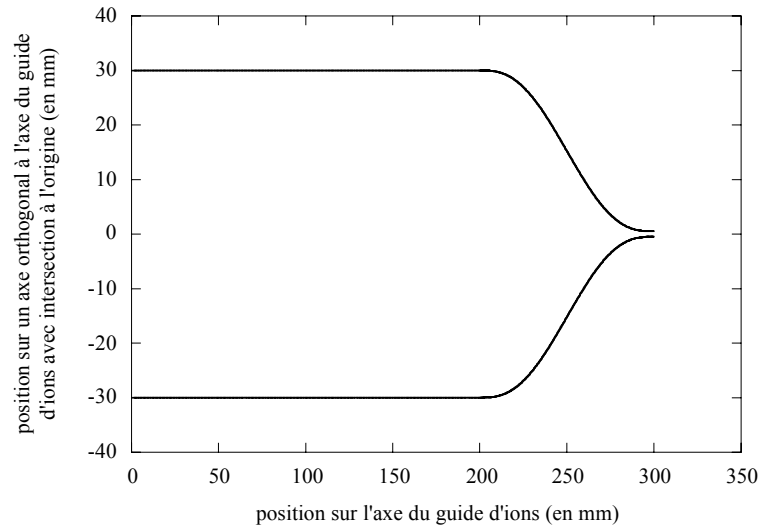
où

- z représente l'abscisse sur l'axe du guide d'ions. z est égal à 0 au niveau du début du guide d'ions et z est égal à L en sortie du guide d'ions.
- L, la longueur du guide d'ions.
- $L_c$ , la longueur de la zone de rétrécissement du guide d'ions.
- D, le diamètre du guide d'ions.
- d, le diamètre du trou de sortie du guide d'ions.

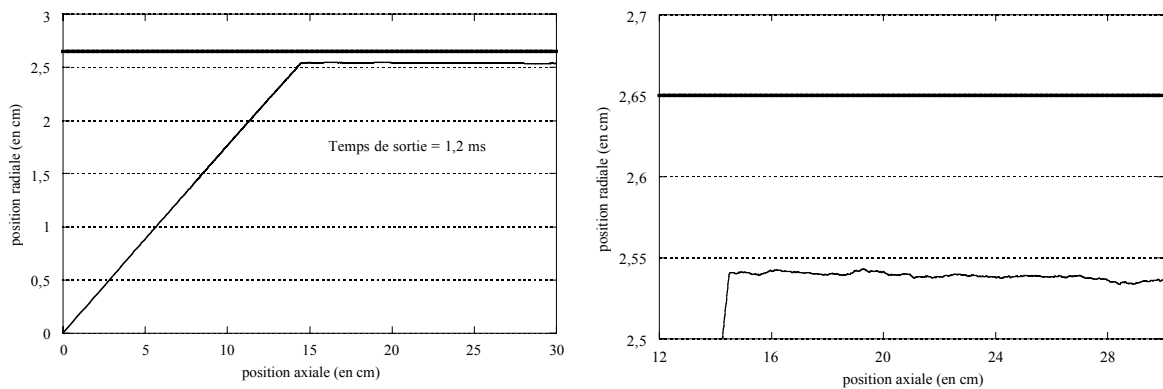
Le cas particulier où L est égal à 30 cm,  $L_c$  à 40 mm, D à 53 mm et d à 1,2 mm est représenté dans la figure V-1. Ce cas particulier correspond à la forme théorique du guide d'ions prototype que nous avons envisagé.

### **V.1.2 Forme théorique des lignes de champ électrique**

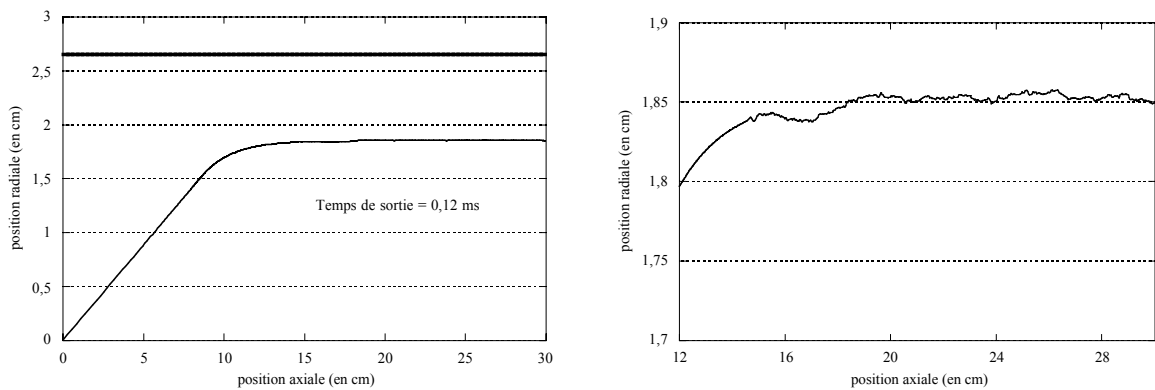
L'influence de l'intensité du champ électrique sur la trajectoire et le temps de sortie des ions a été simulée avec le Code MI-GI-CHEMIN. Deux simulations sont représentées dans les figures V-2 et V-3. La figure V-2 représente la trajectoire d'un ion de  $^{19}\text{C}$  de 1.6 MeV, dans un cylindre creux de 30 cm de longueur et de 53 mm de diamètre, pour une pression d'hélium de 1 atm et des lignes de champ électrique horizontales d'intensité  $10^3$  V/m. La figure V-3 représente la trajectoire du même ion (avec les mêmes conditions initiales), dans le même cylindre creux avec la même pression d'hélium, mais pour des lignes de champ électrique horizontales d'intensité  $10^5$  V/m. Le temps de sortie du guide d'ions varie d'un facteur 10 entre les deux cas. Pour un champ électrique de  $10^3$  V/m, le temps de sortie obtenu est de 1,2 ms.



**Fig. V-1** – Forme théorique des parois d'un guide d'ions prototype (équations V-4 et V-5) de 30 cm de longueur, de 53 mm de diamètre, de 1,2 mm de diamètre au niveau du trou de sortie et de 40 mm de longueur au niveau de la zone de rétrécissement

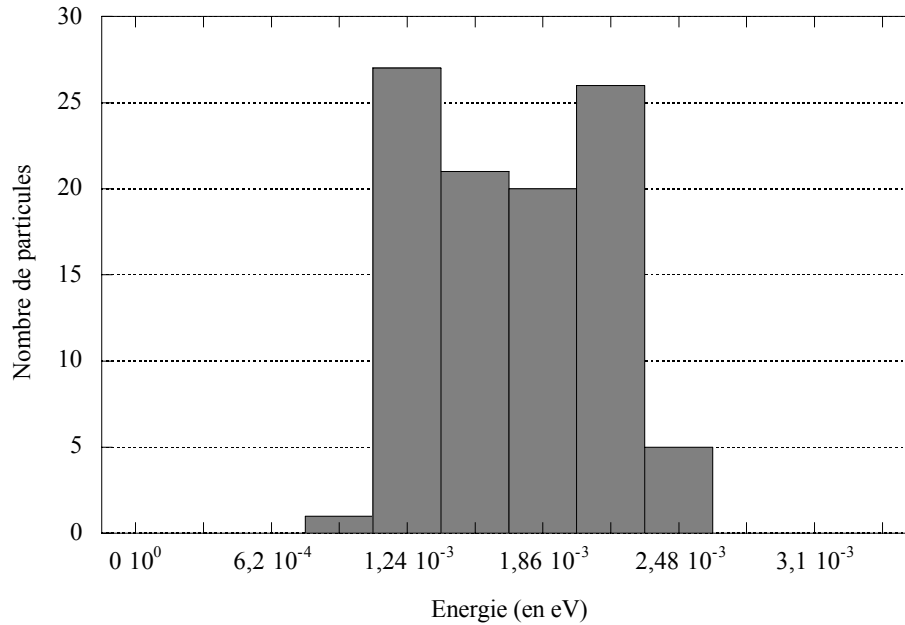


**Fig. V-2** – Trajectoire et temps de sortie d'un ion de  $^{19}\text{C}$  de 1.4 MeV (angle d'entrée de  $10^\circ$ ), dans un cylindre creux de 30 cm de longueur et de 53 mm de diamètre, pour une pression d'hélium de 1 atm et des lignes de champ électrique horizontales d'intensité  $10^3$  V/m

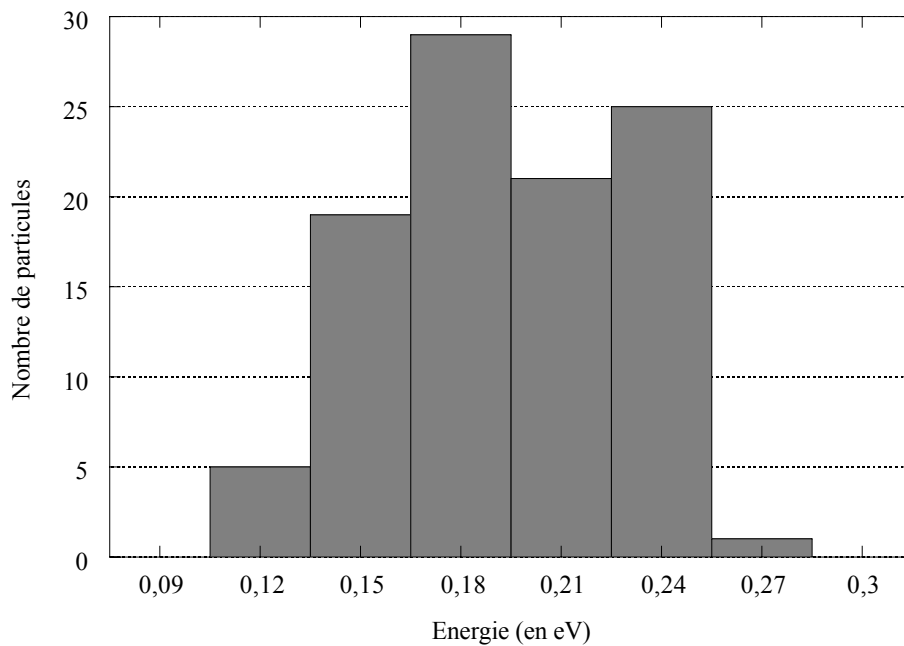


**Fig. V-3** – Trajectoire et temps de sortie d'un ion de  $^{19}\text{C}$  de 1.4 MeV (angle d'entrée de  $10^\circ$ ), dans un cylindre creux de 30 cm de longueur et de 53 mm de diamètre, pour une pression d'hélium de 1 atm et des lignes de champ électrique horizontales d'intensité  $10^5$  V/m

Les dispersions en énergie associées aux deux situations simulées précédemment (cf. figure V-2 et figure V-3) sont représentées dans les figures V-4 (cas d'une intensité de champ électrique de  $10^3$  V/m) et V-5 (cas d'une intensité de champ électrique de  $10^5$  V/m).



**Fig. V-4** – Dispersion en énergie des ions de  $^{19}\text{C}$  (énergie initiale de 1.4 MeV), en sortie d'un cylindre creux de 30 cm de longueur et de 53 mm de diamètre, pour une pression d'hélium de 1 atm et des lignes de champ électrique horizontales d'intensité  $10^3$  V/m



**Fig. V-5** – Dispersion en énergie des ions de  $^{19}\text{C}$  (énergie initiale de 1.4 MeV), en sortie d'un cylindre creux de 30 cm de longueur et de 53 mm de diamètre, pour une pression d'hélium de 1 atm et des lignes de champ électrique horizontales d'intensité  $10^5$  V/m

Pour guider les ions vers la sortie du guide d'ions et éviter qu'ils heurtent une paroi, les lignes de champ électrique doivent suivre la forme du guide d'ions. En imposant un potentiel à géométrie cylindrique sur la paroi interne du guide d'ions (par l'intermédiaire d'un dépôt résistif, par exemple) et en faisant varier ce potentiel (en jouant sur l'épaisseur du dépôt) de façon à ce que l'équation de Maxwell, résolue en considérant une paroi interne longée par les lignes de champ électrique, soit respectée, cela est tout à fait envisageable. Pour éviter la divergence des lignes de champ en sortie du guide d'ions, l'utilisation d'un anneau de garde est préférable (comme dans les condensateurs plans, par exemple).

Pour la forme du guide d'ions choisie précédemment (cf. équations V-4 et V-5), le vecteur unitaire indiquant, en tout point du guide d'ions, la direction du champ électrique souhaité est représenté par le vecteur suivant :

$$\vec{u} = \begin{pmatrix} \frac{dr}{dz}(z) \\ \sqrt{1 + \left(\frac{dr}{dz}(z)\right)^2} \\ 1 \\ \sqrt{1 + \left(\frac{dr}{dz}(z)\right)^2} \end{pmatrix} \quad (\text{V-6})$$

avec pour  $z \in [0, L - L_c]$  :

$$r(z) = R \quad (\text{V-7})$$

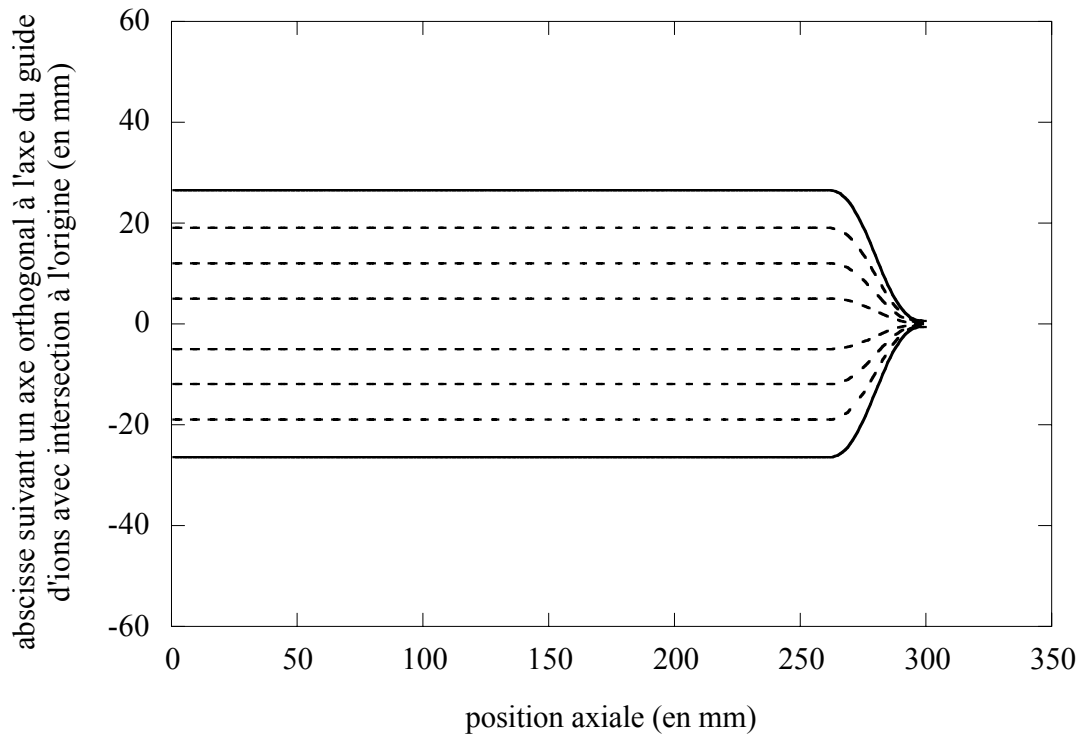
et pour  $z \in [L - L_c, L]$  :

$$r(z) = R \left[ 1 - \frac{1}{L_c^5} \left( 1 - \frac{d}{D} \right) \left[ 6(z + L_c - L)^5 - 15L_c(z + L_c - L)^4 + 10L_c^2(z + L_c - L)^3 \right] \right] \quad (\text{V-8})$$

où

- R représente le paramètre caractéristique d'une ligne de champ. La valeur de R, qui permet de savoir sur quelle ligne de champ se trouve l'ion, est déduite de l'équation V-7 ou V-8 (suivant la valeur de z) grâce à la position radiale r(z) de l'ion.
- z représente l'abscisse sur l'axe du guide d'ions. z est égal à 0 au niveau du début du guide d'ions et z est égal à L en sortie du guide d'ions.
- la première composante du vecteur  $\vec{u}$  représente la composante radiale.
- la deuxième composante, celle axiale.
- L, la longueur du guide d'ions.
- $L_c$ , la longueur de la zone de rétrécissement du guide d'ions.
- D, le diamètre du guide d'ions.
- d, le diamètre du trou de sortie du guide d'ions.

Les lignes de champ électrique correspondant aux équations V-6, V-7 et V-8, dans un guide d'ions prototype dont la paroi est déterminée par les équations V-4 et V-5, sont représentées dans la figure V-6, dans le cas particulier où  $L$  est égal à 30 cm,  $L_c$  à 40 mm,  $D$  à 53 mm et  $d$  à 1,2 mm.

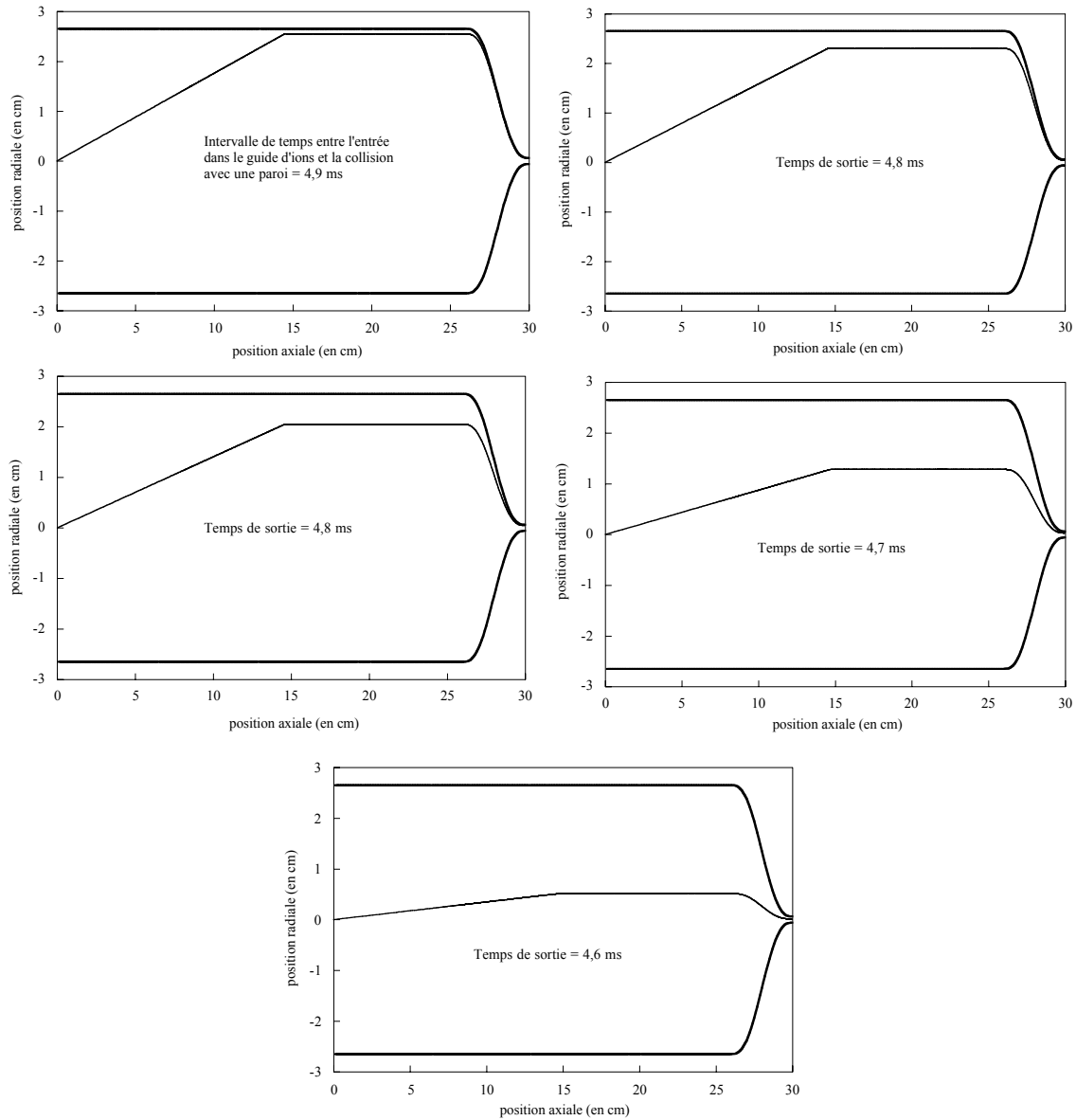


**Fig. V-6** – Forme théorique des lignes de champ électrique du guide d'ions prototype de 30 cm de longueur, 53 mm de diamètre, 1,2 mm de diamètre au niveau du trou de sortie et 40 mm de longueur au niveau de la zone de rétrécissement. Les parois du guide d'ions sont en traits pleins et les lignes de champ électrique en traits pointillés

La trajectoire et le temps de sortie des ions, pour le guide d'ions prototype décrit dans la figure V-6, ont été simulés avec le Code MI-GI-CHEMIN. La trajectoire d'un ion de  $^{19}\text{C}$  de 1.4 MeV, pour différents angles d'entrée dans le guide d'ions, pour une pression d'hélium de 1 atm et une intensité de champ électrique de  $10^5$  V/m au niveau du trou de sortie, est représentée dans la figure V-7.

Les temps de sortie obtenus par le Code sont de l'ordre de quelques millisecondes. Ce résultat est compatible avec les temps de sortie expérimentaux, obtenus récemment par G. Savard à l'ANL [Sav-02], avec un guide d'ions prototype de plusieurs dizaines de centimètres. En effet, des temps de sortie inférieurs à 10 ms ont été mesurés.

La trajectoire du  $^{19}\text{C}$ , entrant avec un angle de  $10^\circ$  dans le guide d'ions (première trajectoire de la figure V-7), se termine par un contact, sur la paroi du guide d'ions, quelques dixièmes de millimètre avant l'extraction du guide. Cet ion a longé la paroi du guide et a fini par heurter cette paroi en raison de la diffusion élastique. Ce cas particulier indique qu'il est préférable que les ions radioactifs ne soient pas arrêtés trop près des parois du guide d'ions.



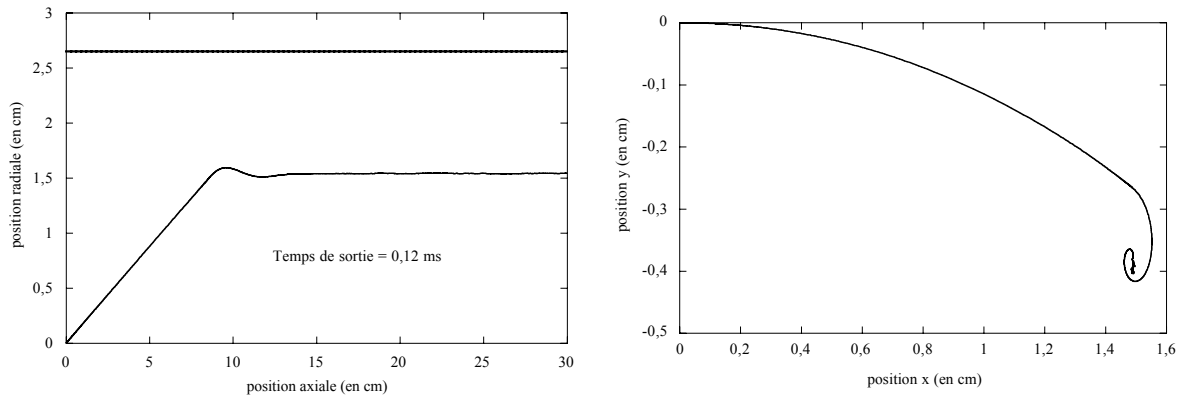
**Fig. V-7** – Trajectoire et temps de sortie d'un ion de  $^{19}\text{C}$  de 1.A MeV, pour différents angles d'entrée ( $10^\circ$ ,  $9^\circ$ ,  $8^\circ$ ,  $5^\circ$  et  $2^\circ$ ) dans un guide d'ions prototype de 30 cm de longueur, 53 mm de diamètre, 1,2 mm de diamètre au niveau du trou de sortie et 40 mm de longueur au niveau de la zone de rétrécissement, pour une pression d'hélium de 1 atm et pour une intensité de champ électrique de  $10^5$  V/m au niveau du trou de sortie

### V.1.3 Cas particulier du champ magnétique

L'influence du champ magnétique sur la trajectoire et le temps de sortie des ions a été simulée avec le Code MI-GI-CHEMIN. La trajectoire d'un ion de  $^{19}\text{C}$  de 1.A MeV, dans un cylindre creux de 30 cm de longueur et de 53 mm de diamètre et pour des lignes de champ électrique horizontales d'intensité  $10^5$  V/m, est représentée dans la figure V-8 pour une pression d'hélium de 1 atm et des lignes de champ magnétique horizontales d'intensité 2 T.

L'application d'un champ magnétique ne modifie pas le temps de sortie du guide d'ions (on obtient encore 0,12 ms pour l'exemple de la figure V-8). La trajectoire des

particules est difficilement courbée, par un champ magnétique de 2 T, en début de parcours. Mais plus l'énergie des ions est faible, plus l'influence du champ magnétique se fait sentir et plus la trajectoire des ions est courbée. Un champ magnétique permet donc d'éviter que les ions aillent heurter une paroi du guide d'ions pendant le parcours de haute énergie à basse énergie.



**Fig. V-8** – Trajectoire et temps de sortie d'un ion de  $^{19}\text{C}$  de 1.4 MeV (angle d'entrée de  $10^\circ$ ), dans un cylindre creux de 30 cm de longueur et de 53 mm de diamètre, avec une pression d'hélium de 1 atm, des lignes de champ électrique horizontales d'intensité  $10^5$  V/m et des lignes de champ magnétique horizontales d'intensité 2 T

#### **V.1.4 Neutralisation par réaction avec des impuretés**

Une estimation des pertes, par réaction avec des impuretés présentes dans le guide d'ions, a été déterminée, à partir du Code, pour une distance parcourue d'environ 15 cm. Avec une concentration en impuretés de 100 ppm (soit 0,01 % de la quantité d'hélium) et une section efficace de collision avec les impuretés de  $10^{-15}$  cm<sup>2</sup> (valeur typique de sections efficaces de collision atomique), les pertes par neutralisation sont de 100 % pour une section efficace de neutralisation de  $10^{-16}$  cm<sup>2</sup> (valeur pour des éléments très réactifs), de l'ordre de 20 à 40 % pour une section efficace de neutralisation de  $10^{-17}$  cm<sup>2</sup> et de 0 % pour une section efficace de neutralisation de  $10^{-18}$  cm<sup>2</sup> (valeur pour des éléments peu réactifs).

### **V.2 Premières démarches de développement**

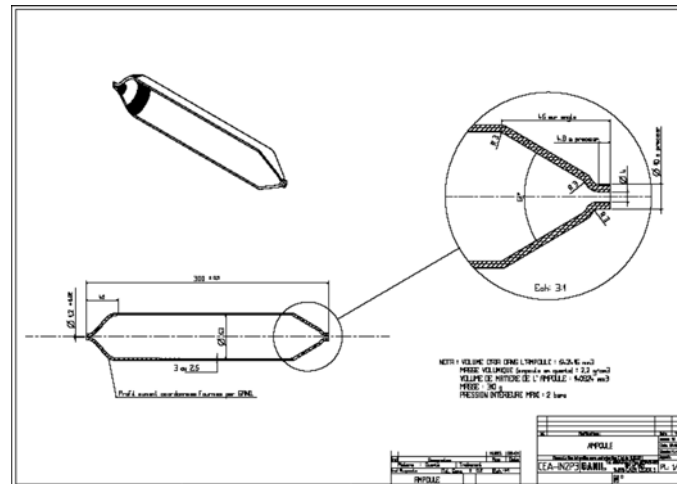
#### **V.2.1 Réalisation de la partie en verre**

Plusieurs entreprises (BOROVER, EDIVER et PMB) spécialisées dans la fabrication d'objet en verre [Edi-1][Pmb-1] ont été contactées. Nous avons pu également obtenir, via la délégation Paris Michel-Ange du CNRS, les coordonnées de quelques unités [Lvc-1][Icm-1], appartenant au CNRS, spécialisées dans le développement des verres. Avec l'ensemble de ces contacts, nous avons négocié la fabrication d'un guide d'ions prototype, en verre, dont les dimensions et la forme se rapprochent au mieux du guide d'ions prototype théorique décrit



précédemment (cf. partie V.1.1). Seule l'entreprise PMB [Pmb-1] a accepté de réaliser un guide d'ions prototype, dont le plan est représenté dans la figure V-9.

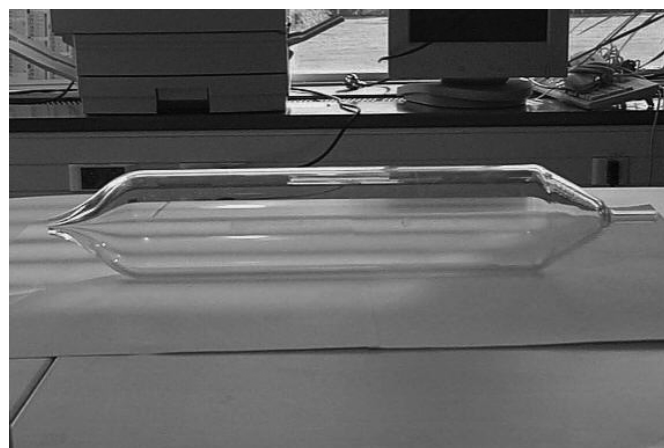
Nous avons également appris l'existence d'un souffleur de verre, S. Aiello, travaillant dans une unité associée au CNRS [Lcm-1], dans un laboratoire situé à quelques centaines de mètres du GANIL. Nous avons donc entrepris la fabrication d'un guide d'ions prototype en verre avec le souffleur de verre.



**Fig. V-9** – Plan du guide d'ions prototype, en verre, négocié avec l'industrie PMB

Les résultats obtenus par PMB et le souffleur de verre sont complètement différents du point de vue qualité. Le prototype de PMB présente des défauts qui le rendent inutilisable. Par contre, le prototype réalisé par S. Aiello est d'une qualité remarquable. La méthode utilisée pour fabriquer la pièce en verre est à l'origine de cette différence. La pièce du souffleur de verre a été entièrement réalisée à la main grâce à un savoir-faire. Par contre, la pièce de PMB a été réalisée via une « cale » extérieure commandée par une machine numérique. Cette cale a engendré des vibrations dans le verre qui se traduisent par des petites ondulations dans la forme du verre. De plus, une rupture d'angle est présente vers le trou de sortie du guide d'ions, ce qui le rend définitivement inutilisable.

La pièce prototype en verre, réalisée par le souffleur de verre, est présentée dans la figure V-10.



**Fig. V-10** – Pièce prototype en verre réalisée par le souffleur de verre du LCMT [Lcm-1]

### **V.2.2 Réalisation d'un dépôt résistif pour la création du champ électrique souhaité**

Pour un déplacement élémentaire le long de la paroi interne du guide d'ions, suivant la direction de son axe, la valeur de la résistance élémentaire du dépôt résistif est définie par la relation suivante :

$$dR = \frac{\rho \cdot dl}{2\pi \cdot \text{paroi}(z) \cdot dr(z) - \pi \cdot dr(z)^2} \quad (\text{V-9})$$

où

- $z$  représente l'abscisse sur l'axe du guide d'ions.
- $\text{paroi}(z)$ , la distance entre l'axe et la paroi interne du guide d'ions à l'abscisse  $z$ .  $\text{paroi}(z)$  est défini par les équations V-4 et V-5 (cf. partie V.1.1).
- $dr(z)$ , l'épaisseur du dépôt à l'abscisse  $z$ .
- $\rho$ , la résistivité du matériau évaporé.
- $dl$ , la longueur du déplacement élémentaire le long de la paroi du guide d'ions.
- $dR$ , la valeur de la résistance élémentaire associée à la longueur du déplacement élémentaire.

La valeur du courant traversant l'intégralité du guide d'ions est donc donnée par la relation suivante :

$$I = \frac{E(z) \cdot (2\pi \cdot \text{paroi}(z) \cdot dr(z) - \pi \cdot dr(z)^2)}{\rho} \quad (\text{V-10})$$

où

- $I$  représente le courant traversant le guide d'ions.
- $E(z)$ , le champ électrique sur la paroi interne du guide d'ions à l'abscisse  $z$ .

La puissance ohmique déposée dans le dépôt résistif du guide d'ions est donc égale à :

$$P = U \cdot I = U \cdot \frac{E(z) \cdot (2\pi \cdot \text{paroi}(z) \cdot dr(z) - \pi \cdot dr(z)^2)}{\rho} \quad (\text{V-11})$$

où

- $U$  représente la différence de potentiel appliquée aux bornes du guide d'ions.
- $P$ , la puissance déposée dans le dépôt résistif du guide d'ions.

Pour notre guide d'ions prototype de longueur 30 cm, le diamètre du trou de sortie est de 1,2 mm. L'équation V-10 nous indique donc que, pour un courant de l'ordre de 0,5 mA (soit une puissance dissipée d'environ 1,5 W), pour un champ électrique de  $10^5$  V/m et un dépôt d'épaisseur 1  $\mu\text{m}$  au niveau du trou de sortie, des résistivités de l'ordre de 1  $\Omega \cdot \text{m}$  sont nécessaires.

Notre idée première était de réaliser un dépôt résistif en carbone, à symétrie cylindrique, sur la paroi interne du guide d'ions et d'appliquer une différence de potentiel entre la face d'entrée et celle de sortie du guide d'ions, pour pouvoir créer notre champ électrique souhaité (cf. partie V.1.2). Cependant, la résistivité du carbone est très faible (entre 10 et 20  $\mu\Omega.m$ ), donc des dépôts de l'ordre du  $\mu m$  engendrent une puissance dissipée de l'ordre de plusieurs kW, ce qui n'est pas du tout envisageable. Cependant, des mesures de résistivité du carbone évaporé, effectuées au GANIL, ont montré que la valeur de la résistivité du carbone est complètement différente suite à une évaporation. Nous avons obtenu une valeur de l'ordre de 0,07 à 0,08  $\Omega.m$ . Par conséquent, pour obtenir un courant de 0,5 mA et un champ électrique de l'ordre de  $10^5$  V/m au niveau du trou de sortie, un dépôt de carbone de l'ordre de 0,1  $\mu m$  est nécessaire au niveau du trou de sortie. L'épaisseur du dépôt en un point quelconque du guide d'ions est obtenue à partir de l'équation V-10 et peut être représentée par la relation suivante :

$$dr(z) = \text{paroi}(z) - \sqrt{\text{paroi}(z)^2 - \frac{\rho I}{\pi E(z)}} \quad (\text{V-12})$$

Cela implique une épaisseur de carbone au niveau du grand diamètre du guide d'ions (26,5 mm) de l'ordre de 4,4  $\mu m$ . Très récemment, nous nous sommes intéressés à un autre matériau présentant une résistivité plus intéressante : le germanium. En effet, le germanium présente une résistivité de l'ordre de 0,5  $\Omega.m$ , ce qui correspond exactement à l'ordre de grandeur de résistivité qui nous intéresse. Cela implique que, pour obtenir un courant de 0,5 mA et un champ électrique de l'ordre de  $10^5$  V/m au niveau du trou de sortie, un dépôt de germanium de l'ordre de 0,6  $\mu m$  est nécessaire au niveau du trou de sortie et de l'ordre de 27  $\mu m$  au niveau du grand diamètre du guide d'ions. Ces épaisseurs restent faibles, mais elles commencent à être contrôlables. De plus, il est fort probable, comme pour le carbone évaporé, que la résistivité du germanium évaporé soit de plusieurs ordres de grandeur supérieure à la résistivité du germanium vendu. Cela ferait du germanium, le matériau résistif idéal pour notre guide d'ions. Des mesures de résistivité sont donc indispensables et des commandes de germanium ont été passées dans l'optique de réaliser ces mesures.

### **V.3 Perspectives**

Les mesures de résistivité du germanium évaporé permettront de définir les épaisseurs de dépôt nécessaires sur la paroi interne du guide d'ions prototype. La véritable difficulté consiste à réaliser le dépôt lui-même. Plusieurs laboratoires plus ou moins habitués à effectuer des dépôts de couches minces ont trouvé l'étape de l'évaporation difficile à réaliser en raison du petit diamètre du trou de sortie. Cependant, plusieurs propositions ont été effectuées :

- la première, proposée par N. Fabre du LAAS (Laboratoire d'Analyse et d'Architecture des Systèmes) à Toulouse, consiste à introduire un fil, du matériau que l'on souhaite évaporé, à l'intérieur du guide d'ions (sur l'axe) et de chauffer le fil par un système à induction à l'extérieur du guide d'ions. Le dépôt est ainsi réalisé par évaporation.

- la deuxième solution [Tus-03], proposée par le CRISMAT (Laboratoire de Cristallographie et Science des Matériaux) à Caen, est basée sur la méthode MOCVD (Metal Organic Chemical Vapour Deposition). Elle consiste à injecter un mélange gazeux homogène à l'intérieur du guide d'ions. Un des composants du mélange doit être le germanium associé à un radical libre. La méthode consiste à élever la température du gaz pour briser les liaisons entre les radicaux libres et le germanium.

Un « caisson test » est actuellement en cours d'étude [Tus-03] pour pouvoir réaliser des mesures hors-ligne d'efficacité de notre système suivant la pression d'hélium et le champ électrique appliqués.

Enfin, le GANIL doit réaliser, dans le cadre du programme « Ion Catcher », des mesures de parcours des ions dans différents gaz.



# CONCLUSION

L'objectif de cette thèse a été d'étudier la possibilité de produire de nouveaux faisceaux d'ions radioactifs, par la méthode ISOL, au GANIL, en exploitant les faisceaux d'ions stables disponibles actuellement sur cet accélérateur.

Dans un premier temps, nous avons décrit les différents aspects techniques de la méthode ISOL, soit les techniques :

- « cible épaisse – source d'ions – séparateur isotopique ».
- « cible mince – stoppeur solide – source d'ions – séparateur isotopique ».
- « cible mince – stoppeur gazeux – jet d'hélium – source d'ions – séparateur isotopique ».
- « cible mince – guide d'ions – séparateur isotopique ».

C'est la détermination des efficacités de production, d'un faisceau d'ions radioactifs donné, qui permet d'effectuer le meilleur choix quant à la technique de production de ce faisceau d'ions radioactifs. Pour les deux premières techniques basées sur la méthode ISOL, la détermination des efficacités est effectuée en caractérisant l'ensemble cible-source pour la production des faisceaux de l'élément radioactif souhaité. Cette caractérisation consiste à déterminer les propriétés de diffusion, celles d'effusion et celles d'ionisation.

Une nouvelle méthodologie de caractérisation des ensembles cible-source, pour la production des faisceaux d'ions radioactifs d'un élément donné, a été développée : la « méthode globale ». Cette méthode permet de déterminer les coefficients caractéristiques de la diffusion (coefficients d'Arrhenius), de l'effusion (enthalpie d'adsorption) et de l'ionisation, à partir de données expérimentales d'efficacité totale pour différentes températures de cible et pour différents isotopes de l'élément étudié. Nous avons montré, à partir de données fictives d'efficacité totale, que cette méthode converge vers une solution unique.

Nous avons étudié la production de faisceaux d'ions radioactifs avec SPIRAL. Les taux de production des faisceaux de  $^{17}\text{Ne}$ ,  $^{18}\text{Ne}$  et  $^{19}\text{Ne}$ , attendus sur SPIRAL, ont été

déterminés à partir de mesures effectuées sur le banc de tests SIRa. Nous avons également montré, à partir de ces mesures, que le taux de production d'un faisceau de néon radioactif est fiable dans le temps, au moins pendant plusieurs jours d'expérience.

La faisabilité de la production de faisceaux d'éléments radioactifs condensables, avec des ensembles cible-source basés sur les mêmes techniques ISOL que ceux de SPIRAL, en utilisant un transport, entre la cible et la source d'ions, sous une forme moléculaire volatile à la température du tube de transfert, a été démontrée. En effet, nous avons produit, sur SIRa, des faisceaux d' $^{14}\text{O}$  et d' $^{15}\text{O}$ , via la molécule CO, avec une très bonne efficacité pour un élément condensable (12 % d'efficacité cible-source pour la production de l' $^{14}\text{O}$ ). Ce résultat constitue un des plus importants résultats de cette thèse. Des faisceaux d' $^{13}\text{N}$  ont également été produits, mais avec de moins bonnes efficacités. Un faisceau de  $^{18}\text{F}$  a été mesuré pendant la première expérience SPIRAL. Pour ces deux derniers cas (azote et fluor), la forme moléculaire ayant servi à transporter ces deux éléments n'a pas été déterminée.

Les taux de production, attendus sur SPIRAL, des faisceaux d' $^{14}\text{O}$ , d' $^{15}\text{O}$ , d' $^{13}\text{N}$  et de  $^{18}\text{F}$  ont été déterminés à partir des mesures effectuées précédemment.

Nous avons étudié la production de faisceaux d'alcalins radioactifs à partir de l'ensemble cible-source MONOLITHE. Cet ensemble cible-source, basé sur la méthode ISOL, évite les parois froides entre la cible et la source d'ions (source à cavité chaude). Son principe de fonctionnement a été décrit. Les taux de production des faisceaux de  $^{25}\text{Na}$ ,  $^{26}\text{Na}$ ,  $^{27}\text{Na}$ ,  $^8\text{Li}$  et  $^9\text{Li}$ , à partir d'un faisceau d' $^{36}\text{Ar}$  de 95 MeV/A, ont été mesurés pour différentes températures de cible. Les efficacités totales, déduites de ces taux de production, ont permis d'appliquer la « méthode globale » pour la production des faisceaux de lithium et de sodium radioactifs à partir de MONOLITHE. Les coefficients d'Arrhenius, de ces deux éléments, ont ainsi pu être déterminés. C'est la première fois que nous déterminons, au GANIL, les coefficients d'Arrhenius d'éléments autres que des gaz rares. Nous avons pu alors conclure que les coefficients d'Arrhenius des alcalins, comme pour les gaz rares, évoluent de façon croissante par rapport au nombre de protons. Ce résultat constitue un autre résultat fondamental de cette thèse. Nous avons pu également déterminer, pour la première fois au GANIL, les enthalpies d'adsorption d'éléments condensables (lithium et sodium). Par contre, l'application de la « méthode globale » a montré que la cavité chaude de MONOLITHE se comporte comme une source à ionisation de surface, ce qui engendre des efficacités d'ionisation plus faibles. Cette méthode a également montré que la diffusion dans la cible est plus pénalisante que l'effusion pour la production des faisceaux de sodium radioactif à partir de MONOLITHE, alors que c'est l'effusion qui est plus pénalisante que la diffusion pour la production des faisceaux de lithium radioactif à partir de cet ensemble.

Nous avons étudié la production de faisceaux d'ions radioactifs à partir de la méthode IGISOL. Le principe théorique de fonctionnement et les limitations de la méthode ont été abordés. Un bilan fonctionnel qualitatif, des ensembles IGISOL existant, a été établi. Il a montré que cette technique est très prometteuse, surtout depuis les derniers résultats obtenus par G. Savard à l'ANL : 45 % d'efficacité, avec des temps de sortie inférieurs à 10 ms, pour des conditions de fonctionnement « on-line » [Sav-02]. Nous nous sommes intéressés à

l'adaptation de la technique IGISOL à la fragmentation du projectile, dans le but de construire, dans un avenir proche, un premier prototype IGISOL au GANIL. Nous avons vu que pour de telles réactions, il est nécessaire de disposer d'un guide d'ions d'au moins plusieurs dizaines de centimètres de longueur, possédant une pression d'hélium d'au moins 1 atmosphère et un champ électrique interne de l'ordre de  $10^4 - 10^5$  V/m/atm pour guider rapidement les ions radioactifs, arrêtés dans le guide d'ions, vers la sortie de ce dernier.

Nous avons vu qu'il est nécessaire de disposer d'un Code permettant de déterminer la trajectoire des ions dans un guide d'ions incluant des champs électriques et de déterminer les pertes associées à la diffusion et aux réactions avec les impuretés présentes dans le guide d'ions. Un tel Code a été conçu pendant cette thèse : le Code MI-GI-CHEMIN. Nous avons vu que ce Code reproduit parfaitement le mouvement des ions dans des champs électriques et magnétiques. Nous avons vu, par contre, en se basant sur des mesures expérimentales effectuées à partir de détecteurs gazeux, que ce Code semble surestimer la vitesse moyenne de déplacement des ions dans l'hélium. Cependant, les temps de sortie obtenus à partir du Code sont compatibles avec les résultats expérimentaux récents obtenus par G. Savard.

Nous avons défini la géométrie d'un premier prototype IGISOL au GANIL. Pour éviter des apports en impuretés dans le guide d'ions, nous avons proposé de construire les parois du prototype en verre. Le champ électrique, à l'intérieur du guide d'ions, sera finalement créé en appliquant une différence de potentiel entre les deux extrémités d'un dépôt de germanium effectué sur la paroi interne du guide d'ions. Des épaisseurs typiques de dépôt, pour le guide d'ions, de l'ordre du  $\mu\text{m}$  ont été calculées à partir de la résistivité commerciale du germanium. Le Code MI-GI-CHEMIN a été appliqué afin de déterminer les temps de sortie caractéristiques de ce guide d'ions prototype. Des temps de sortie de l'ordre de quelques millisecondes ont été obtenus. Finalement, la partie en verre du prototype a été réalisée par un souffleur de verre. La réalisation du dépôt est à l'étude.

Plusieurs perspectives ont été proposées pour produire de nouveaux faisceaux d'ions radioactifs, par la méthode ISOL, au GANIL :

- le transport des atomes radioactifs, de la cible jusqu'à la source d'ions, sous une forme moléculaire volatile à température de salle, s'étant avéré très efficace, des solutions ont été proposées afin de pouvoir transporter les éléments radioactifs les plus légers (bore, carbone, azote, fluor), sous une forme moléculaire volatile, de la cible jusqu'à la source d'ions.
- la production des faisceaux d'alcalins radioactifs sur SPIRAL est actuellement à l'étude, via le couplage de l'ensemble cible-source MONOLITHE avec la source d'ions NANOGAN III. Des faisceaux de sodium et de potassium radioactifs pourraient être disponibles dès la fin de l'année 2003.
- la construction d'un guide d'ions prototype, pour le GANIL, doit être achevée. L'étape difficile restant à réaliser est l'évaporation du dépôt de germanium à l'intérieur du guide d'ions en verre. Une technique d'évaporation est actuellement à l'étude : la



méthode MOCVD. Enfin, il serait intéressant de trouver un moyen de contrôle des épaisseurs de dépôt.

Les recherches concernant la production de faisceaux d'éléments radioactifs condensables, par la méthode ISOL, sont encore très loin d'être achevées, puisque la majorité des éléments radioactifs condensables ne sont pas encore produits par cette méthode.

# REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[And-98] T. André et al., *Recent developments for beam intensity increase operation*, Proceedings of the 15<sup>th</sup> International Conference on Cyclotrons and their Applications, Caen, France, Ed. E Baron and M. Lieuvain, Publisher : IOP, (1998) 290.

[Ann-87] R. Anne et al., *The achromatic spectrometer LISE at GANIL*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A257 (1987) 215.

[Ann-92] R. Anne and A. C. Mueller, *LISE3 : a magnetic spectrometer-wien filter combination for secondary radioactive beam production*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B70 (1992) 276-285.

[Ann-93] R. Anne, *On-Line Isotopic Separator Tests Benches at GANIL*, IEEE Particle Accelerator Conference, New York, USA, Vol. 3, (1993) 1792-1794.

[Ärj-81-a] J. Ärje and K. Valli, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 179 (1981) 533.

[Ärj-81-b] J. Ärje, J. Äystö, J. Honkanen, K. Valli and A. Hautojärvi, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 186 (1981) 149.

[Ärj-85] J. Ärje et al., Physical Review Letters, 54 (1985) 99-101.

[Ärj-86-a] J. Ärje, *Ion guide method for isotope separator*, Thèse de l'université de Jyväskylä, Research Report No. 3/86 (1986).

[Ärj-86-b] J. Ärje et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A247 (1986) 431-437.

- [Ärj-87] J. Ärje, J. Äystö, P. Taskenen, J. Honkanen and K. Valli, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B26 (1987) 384.
- [Arx-1] [http://arxiv.org/PS\\_cache/hep-ex/pdf/0212/0212011.pdf](http://arxiv.org/PS_cache/hep-ex/pdf/0212/0212011.pdf)
- [Ast-92] A. Astier et al., *Status report of the SARA IGISOL used in the study of the  $^{238}\text{U}(\alpha 40 \text{ MeV}, f)$  reaction*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B70 (1992) 233-240.
- [Aug-00] G. Auger, F. Bocage et B. Jacquot, *A low energy facility at SPIRAL–GANIL*, Technical Report, GANIL R-00-01 (2000).
- [Äys-74] J. Äystö, P. Puumalainen and K. Valli, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 115 (1974) 65.
- [Äys-76] J. Äystö, V. Rantala, K. Valli, S. Hillebrand, M. Kortelahti, K. Eskola and T. Raunemaa, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 139 (1976) 325.
- [Äys-87] J. Äystö et al., *Separation of fission products by the ion guide fed isotope separator, IGISOL*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B26 (1987) 394-398.
- [Äys-89] J. Äystö et al., *Fast and nonselective on-line mass separation of neutron-rich isotopes produced in proton-induced fission*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B40/41 (1989) 489-493.
- [Äys-01] J. Äystö, *Development and applications of the IGISOL technique*, *Nuclear Physics*, A693 (2001) 477-494.
- [Bar-95] E. Baron and GANIL staff, *Upgrading the GANIL facilities for high-intensity heavy ion beams (T.H.I. Project)*, *Proceedings of the 14<sup>th</sup> International Conference on Cyclotrons and their Applications*, Cape Town, South Africa, Ed. J. C. Cornell, Publisher : World Scientific, (1995) 35.
- [Bar-98] E. Baron and al., *Experience with high intensity operation of the GANIL facility*, *Proceedings of the 15<sup>th</sup> International Conference on Cyclotrons and their Applications*, Caen, France, Ed. E Baron and M. Lieuvain, Publisher : IOP, (1998) 385.
- [Ben-01] J. R. J. Bennett and A. C. C. Villari, *The production of radioactive ion beams*, *Rapport Européen FINA (Frontiers In Nuclear physics and Astrophysics)*, to be published.
- [Ben-02] J. R. J. Bennett et al., *Release studies of a thin foil tantalum target for the production of short-lived radioactive nuclei*, *Nuclear Physics*, A701 (2002) 327c-333c.

- [Bér-94] R. Béraud et al., *Development of a new SARA/IGISOL technique for the study of short-lived products from heavy-ion-induced fusion-evaporation reactions*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A346 (1994) 196-204.
- [Bet-53] H. A. Bethe and J. Ashkin, *Experimental Nuclear Physics*, éd. E. Segré 1 (1953).
- [Bev-69] P. R. Bevington, *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences*, McGRAWHILL BOOK COMPAGNY, New York (1969).
- [Bio-49] M. A. Biondi and S. C. Brown, *Physical Review*, 75 (1949) 1700.
- [Boe-69] J. H. de Boer, *The dynamical character of adsorption*, Clarendon Press Oxford (1969).
- [Boh-48] N. Bohr, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat.-Fys. Medd. 18 (1948) no. 8.
- [Bor-93] M. J. G. Borge et al., *Beta-decay to the proton halo state in  $^{17}\text{F}$* , Physics Letters, B317 (1993) 25-30.
- [Bou-98] M. P. Bourgarel and the SPIRAL/GANIL group, *SPIRAL facility : first results on the CIME Cyclotron obtained with stable ion beams*, Proceedings of the 15<sup>th</sup> International Conference on Cyclotrons and their Applications, Caen, France, Ed. E. Baron and M. Lieuvain, Publisher : IOP, (1998) 311.
- [Boy-97] L. Boy, *Problèmes posés par l'accélération d'ions radioactifs dans le projet SPIRAL : réglage et stabilisation de l'accélérateur*, thèse de l'Université de Paris VI, GANIL T 97 04 (1997).
- [Bri-92] P. Bricault, *An On-Line Isotopic Separator test bench at GANIL*, Proceedings of the 13<sup>th</sup> International Conference on Cyclotrons and Applications, edited by G. Dutto and M. K. Craddock, World Scientific, Vancouver, (1992) 725.
- [Bro-89] *The Physics and Technology of Ion Sources*, éd. I. G. Brown, John Wiley & Sons, New York (1989).
- [Bru-1] <http://www.brunel.ac.uk/~eestprh/pghep/GaseousLecture1.pdf>
- [Bur-01] J. T. Burke et al., *Rev. Sci. Instr.*, (2001) article soumis.
- [Car-78] L. C. Carraz et al., *Fast release of nuclear reaction products from refractory matrices*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 148 (1978) 217-230.

- [Car-95] Le Carbone Lorraine, *Spécifications techniques*, (1995).  
(Spécialités et Matériaux Avancés, BP 148 – 41, rue Jean Jaures, 92 231 Gennevilliers, FRANCE)
- [Che-77] F. Chen, *Introduction to Plasma Physics*, New York (1977), ISBN 0-306-30755-3.
- [Chu-77] W. K. Chu, *Ion beam handbook for material analysis*, ed. J. W. Mayer and E. Rimini, Academic Press, New York, (1977).
- [Cra-75] J. Cranck, *The mathematics of diffusion*, seconde édition édité par Clarendon, Oxford, (1975).
- [Den-87] K. Deneffe et al., *LIGISOL : the Leuven Ion Guide Isotope Separator On-Line*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B26 (1987) 399-405.
- [Den-97] P. Dendooven, *The development and status of the IGISOL technique*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B126 (1997) 182-189.
- [Den-98] P. Dendooven, *Improved ion guide for heavy-ion fusion-evaporation reactions*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A408 (1998) 530-534.
- [Den-00] P. Dendooven, *Investigation of a gas catcher/ion guide system using alpha decay recoil products*, TWIST II : Workshop on Target and Ion Source Technology, GANIL, Caen, France, (Juin 2000) GANIL report R 00 03 (2000).
- [Den-02] P. Dendooven, *A gas catcher for radioactive ions inside the EURISOL concept*, EURISOL Target/Ion Source Task Group, Private Communication, Mars 2002.
- [Dia-99] W. T. Diamond, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A432 (1999) 471.
- [Dia-00] W. T. Diamond and J. R. Beene, *Radioactive Nuclear Beams from Photofission*, Proceedings of the Fifth International Conference on Radio Active Nuclear Beams, RNB 2000, Divonne, France (April 2000), to be published in Nucl. Phys. A.
- [Don-98] E. D. Donets, Rev. Sci. Instr., 69 (1998) 614.
- [Dup-97] P. Van Duppen, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B126 (1997) 66-72.
- [Dup-00] P. Van Duppen et al., Hyperfine Interactions, 127 (2000) 401-408.
- [Edi-1] EDIVER SARL, 6 av. de l'industrie - Z. I. - 77510 REBAIS.

[Eic-85] B. Eichler, S. Hübener und H. Roßbach, *Adsorption flüchtiger metalle auf metallischen oberflächen und ihre anwendung in der kernchemie, berechnung der adsorptionseigenschaften der Actinoide*, Akademie der Wissenschaften der DDR, Zentralinstitut für kernforschung Rossendorf bei Dresden, ZFK-560, 561 (Juli, August 1985).

[Fic-85] A. Fick, Ann. Physik, Leipzig, 170 (1885) 59.

[Fou-97] P. Foury et al., *Graphite target for the SPIRAL project*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B126 (1997) 113-116.

[Fuj-81] M. Fujioka et al., *Diffusion of radioisotopes from solids in the form of foils, fibers and particles*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 186 (1981) 409-412.

[Gae-97] M. Gaelens et al., *Development of radioactive ion beams of light elements at ARENAS*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B126 (1997) 125-129.

[Gae-01] M. Gaelens et al., Eur. Phys. J., A11 (2001) 413.

[Gan-1] <http://www.ganil.fr>

[Gan-2] [http://www.ganil.fr/operation/available\\_beams/available\\_beams\\_tabular.htm](http://www.ganil.fr/operation/available_beams/available_beams_tabular.htm)

[Gan-3] [http://www.ganil.fr/operation/available\\_beams/radioactive\\_beams.htm](http://www.ganil.fr/operation/available_beams/radioactive_beams.htm)

[Gel-82] R. Geller et al., *Le chauffage stochastique des électrons par la résonance cyclotronique électronique. Etude expérimentale d'un plasma dans une structure à puits magnétique*, EUR-CEA-FC-1138 (1982).

[Gel-96] R. Geller, *Electron Cyclotron Resonance Ion Sources and ECR Plasmas*, Institute of Physics Publishing, Bristol (1996).

[Ger-76] M. Gerl, *Phénomènes de transport*, Techniques de l'ingénieur, A247 (1) (1976) 6-13.

[Gib-00] S. Gibouin, *Simulations of an ion guide system including electric and magnetic fields*, TWIST II : Workshop on Target and Ion Source Technology, GANIL, Caen, France, (Juin 2000) GANIL report R 00 03 (2000).

[Gib-02] S. Gibouin et al., *Efficiency and production yield measurements of radioactive O, N and F for the SPIRAL facility*, 14<sup>th</sup> International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques related to their Applications (EMIS 14), Victoria, Canada, (May 2002) to be published in Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, GANIL preprint P 02 20 (2002).

- [Gue-96] D. Guerreau, *The SPIRAL radioactive ion beam facility at GANIL*, Proceedings of the First International Workshop on Physics of Unstable Nuclear Beams, editors : C. A. Bertulani, L. F. Canto and M. Hussein, World Scientific, (1996) 69-76.
- [Har-71] J. C. Hardy, J. E. Esterl, R. G. Sextro and J. Cerny, *Isospin purity and delayed-proton decay :  $^{17}\text{Ne}$  and  $^{33}\text{Ar}$* , Physical Review, C3 (1971) 700-718.
- [Hen-02] W. F. Henning, *Plans for the future facility at GSI*, 14<sup>th</sup> International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques related to their Applications (EMIS 14), Victoria, Canada, (May 2002) to be published in Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.
- [Hua-02] W. X. Huang, *Transport and extraction of radioactive ions stopped in superfluid helium*, 14<sup>th</sup> International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques related to their Applications (EMIS 14), Victoria, Canada, (May 2002) to be published in Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.
- [Hur-88] G. S. Hurst and M. G. Payne, *Principles and Applications of Resonance Ionization Spectroscopy*, Hilger, Londres, 1988.
- [Icm-1] FR1577 Institut de chimie moléculaire d'Orsay (ICMO), Université Paris Sud (Paris XI) – bât. 420 – 91405 ORSAY Cedex
- [Ina-92] T. T. Inamura et al., *Velocity distribution of RIKEN IGISOL ion beams*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B70 (1992) 226-232.
- [Jou-93] A. Joubert, *SPIRAL : a radioactive ion beam facility at GANIL*, Proceedings of the Particle Accelerator Conference, Volume 3, edited by IEEE, New-York, USA (1993) 1789-1791.
- [Jun-89] B. Jungblut et al., *The diffusion of Li in POCO Graphite and Glassy Carbon at low concentrations and high temperatures*, Ber. Bunsenges. Phys. Chem., 93 (1989) 1317-1322.
- [Kan-98] S. Kandri-Rody, *Identification system for SPIRAL*, Proceedings of the 15<sup>th</sup> International Conference on Cyclotrons and their Applications, Caen, France, Ed. E. Baron and M. Lieuvain, Publisher : IOP, (1998) 359.
- [Kan-00] S. Kandri-Rody, *Développement d'un système d'identification pour SPIRAL et test d'une cible d'Uranium liquide dans le cadre du projet PARRNe*, thèse de l'Université Chouaib Doukkali, Faculté des sciences d'El Jadida, Maroc, GANIL T 00 04 (2000).
- [Kin-23] K. H. Kingdom and I. Langmuir, Physical Review, 21 (1923) 385.

- [Kir-75] R. Kirchner and E. Roeckl, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 127 (1975) 307.
- [Kir-76] R. Kirchner and E. Roeckl, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 133 (1976) 187.
- [Kir-81] R. Kirchner, K. H. Burkard, W. Hüller and O. Klepper, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 186 (1981) 295.
- [Kir-87-a] R. Kirchner, *An ion source with bunched beam release*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B26 (1987) 204-212.
- [Kir-87-b] R. Kirchner, O. Klepper, D. Schardt and T. Sekine, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B26 (1987) 235.
- [Kir-90] R. Kirchner, *On the thermoionization in hot cavities*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A292 (1990) 203-208.
- [Kir-92] R. Kirchner, *On the release and ionization efficiency of catcher-ion-source systems in isotope separation on-line*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B70 (1992) 186-199.
- [Kno-79] G. F. Knoll, *Radiation detection and measurement*, édité par John Wiley & Sons, 1979.
- [Kof-51] O. Kofoed-Hansen, K.O. Nielson, K. Danske Vidensk. Selk, Medd. 26, N°7 (1951).
- [Kös-02] U. Köster, *Intense radioactive ion beams produced with the ISOL method*, to be published in European Physical Journal A (2002).
- [Kud-96] Y. Kudryavtsev et al., *Beams of short lived nuclei produced by selective laser ionisation in a gas cell*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B114 (1996) 350-365.
- [Kud-01] Y. Kudryavtsev et al., *A gas cell for thermalizing, storing and transporting radioactive ions and atoms. Part I : Off-line studies with a laser ion source*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B179 (2001) 412-435.
- [Kud-02-a] Y. Kudryavtsev et al., *A gas cell for thermalizing, storing and transporting radioactive ions and atoms. Part II : On-line studies with a laser ion source*, to be published in Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 2002.



- [Kud-02-b] Y. Kudryavtsev et al., *Beams of isotopes produced by laser ionization at LISOL after thermalization of energetic ions in a gas cell*, 14<sup>th</sup> International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques related to their Applications (EMIS 14), Victoria, Canada, (May 2002) to be published in Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.
- [Lan-70] Landolt-Börnstein, *Diffusion in solid metals and alloys*, Numerical Data and Fundamental Relationships in Science and Technology, New Series, Group III: Crystal and Solid State Physics, Volume 26, éd. H. Mehrer, Springer-Verlag, Berlin, (1970).
- [Lan-85] M. Langevin et al., Physical Review B, 150 (1985) 71.
- [Lan-98] F. Landré, *Banc de tests de chauffage pour les cibles de SPIRAL*, Rapport de DEA “Méthodes Physiques Expérimentales”, Université Joseph Fourier, Grenoble (1998).
- [Lan-01] F. Landré-Pellemoine, *Production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL pour SPIRAL*, thèse de l'Université de Caen, GANIL T 01 03 (2001).
- [Lau-97-a] B. Launé, *The SPIRAL radioactive ion beam facility at GANIL*, Proceedings of the 14<sup>th</sup> International Conference on Applications of Accelerators in Research and Industry, Edited by AIP, (1997) 381-384.
- [Lau-97-b] B. Launé, M. G. Saint-Laurent et J. M. Gautier, *La station d'Identification Basse Energie*, Nouvelle du GANIL, éd. G. Auger et M. Bex, (Juillet 1997).
- [Lcm-1] Laboratoire de chimie moléculaire et thio-organique (LCMT), ISMRA, 6 boulevard du maréchal Juin – 14050 – CAEN.
- [Lec-97-a] N. Lecesne, *Etude de la production d'ions radioactifs multichargés en ligne*, thèse de l'Université de Caen, GANIL T 97 08 (1997).
- [Lec-97-b] N. Lecesne et al., *A new method for measuring the absolute efficiency of isotope separation on-line systems*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B126 (1997) 141-145.
- [Lei-95] M. Leino et al., *Gas-filled recoil separator for studies of heavy elements*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B99 (1995) 653-656.
- [Let-87] V. S. Letokhov, *Laser Photoionization Spectroscopy*, Academic Press, Orlando, 1987.
- [Lic-98] R. Lichtenthäler, P. Foury et al., *A simulation of the temperature distribution in the SPIRAL target*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B140 (1998) 415-425.

- [Lie-95] M. Lieuvain and the SPIRAL group, *Status of SPIRAL, the radioactive ion beam project at GANIL*, Proceedings of the 14<sup>th</sup> International Conference on Cyclotron and their Applications, IEEE, Cap Town, South Africa, Edited by J. C. Cornell, (1995) 651-658.
- [Lin-68] J. Lindhard, V. Nielsen and M. Scharff, *Mat.-Fys. Medd. Vid.*, 36 (1968) 10.
- [Lit-1] <http://www.webelements.com/webelements/elements/text/Li/comp.html>
- [Loi-00] M. Loiselet et al., in CAARI 16, ed. by J. L. Duggan and I. L. Morgan, AIP Conference Proceedings, 576 (2000) 269-272.
- [Lum-92] H. Lumbroso, *Problèmes résolus d'électrostatique et dynamique des particules chargées*, Mathématiques supérieures et mathématiques spéciales, Dunod (1984), 3<sup>ème</sup> édition, 7<sup>ème</sup> tirage (1992), ISBN 2-04-019630-7.
- [Lvc-1] UMR6512 Verres et céramiques (LVC), Université Rennes I – bât. 10 – avenue du général Leclerc – 35042 RENNES Cedex
- [Mac-72] R. D. Macfarlane, *Nuclear Spectroscopy*, Vol II, éd. J. Cerney, Academic Press, New York (1972).
- [Mas-79] H. S. W. Massey, *Atomic and Molecular Collisions*, Taylor & Francis Ltd, Londres (1979), ISBN 0-85066-144-7.
- [Mau-94] L. Maunoury, *Etudes des processus de diffusion et mesure de l'efficacité de production de noyaux radioactifs avec le séparateur SIRa*, Rapport de stage DEA, GANIL, (1994).
- [Mau-97] L. Maunoury et al., Proceedings of the 18<sup>th</sup> International Workshop on ECR Ion Sources, College Station, Texas, USA, edited by P. May and E. Ramirez, (1997) 138.
- [Mau-98] L. Maunoury, *Production de faisceaux d'ions radioactifs multichargés pour SPIRAL : études et réalisation du premier ensemble cible-source*, thèse de l'Université de Caen, GANIL T 98 01 (1998).
- [Mor-87] K. Morita et al., *An ion-guide isotope separator on-line at INS*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B26 (1987) 406-409.
- [Nik-68] V. S. Nikolaev and I. S. Dmitriev, *Physics Letters*, A28 (1968) 277.
- [Nol-00] J. Nolen, *Status of the gas catcher at ANL*, TWIST II : Workshop on Target and Ion Source Technology, GANIL, Caen, France, (Juin 2000) GANIL report R 00 03 (2000).

[Nom-88] T. Nomura et al., *An ion-guide technique for on-line isotope separation coupled with a recoil-type beam separator*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A269 (1988) 23-28.

[Nor-70] L. C. Northcliffe and R. F. Schilling, *Range and stopping-power tables for heavy ions*, Nuclear Data Tables, A7 (1970) 233-463.

[Oga-00-a] Zu. Ts. Oganessian, M. G. Itkis, S. N. Dmitriev, G. g. Gulbekian, B. N. Gikal, S. L. Bogomolov, A. A. Efremov, G. M. Ter-Akopian, D. D. Bogdanov, I. V. Kostirev, G. N. Ivanov and A. G. Belov, *Radioactive Nuclear Production and RIB Acceleration on the FLNR Accelerators Base (DRIBS)*, Proceedings of the Fifth International Conference on Radioactive Nuclear Beams, RNB 2000, Divonne, France (April 2000), to be published in Nucl. Phys. A.

[Oga-00-b] Yu. Oganessian, *RIB Production with Photofission*, Proceedings of the Fifth International Conference on Radioactive Nuclear Beams, RNB 2000, Divonne, France (April 2000), to be published in Nucl. Phys. A. (Dubna Report No. E7-2000-83).

[Osh-92] M. Oshima et al., *Development of a laser –enhanced ion-guide ion source*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B70 (1992) 241-244.

[Oza-98] A. Ozawa et al., *Measurement of the  $\beta$ -decay branching ratio of  $^{17}\text{Ne}$  into the first excited state of  $^{17}\text{F}$* , J. Phys. G: Nucl. Part. Phys., 24 (1998) 143-150.

[Pmb-1] PMB Métacéram Technologies, 283 rue de la minière – B. P. 108 – 78531 BUC Cedex.

[Poc-99] EDM POCO graphite, *Technical Manual*, (1999).  
(Poco Graphite, Inc., 1601 South State Street, Decatur, TEXAS 76234 USA)

[Pre-88] W. H. Press et al., *NUMERICAL RECIPES in C*, The Art Of Scientific Computing, Cambridge University Press, (1988).

[Put-81] J. C. Putaux, J. Obert, L. Kotfila, B. Roussiere, J. Sauvage-Letessier, C. F. Liang, A. Peghaire, P. Paris, J. Giroux and the ISOCELE Collaboration, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 186 (1981) 321.

[Qam-92] Z. N. Qamhieh et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B70 (1992) 131.

[Rae-64] H. Raether, *Electron avalanches and breakdown in gases*, edited by J. D. Craggs and J. M. Meek, Butterworths, London, 1964.

[Ray-1] <http://www.webelements.com/webelements/elements/text/He/radii.html>

[Ria-1] <http://www.nsl.msu.edu/research/ria/home.html>

[Ria-2] <http://www.phy.anl.gov/ria/>

[Rob-74] B. Robrieux, R. Faure, J. P. Dussaulcy, *Résistivité et travail de sortie du carbone en couches très minces*, C. R. Acad. Sc. Paris, t. 278, série B (1<sup>er</sup> avril 1974) 659-662.

[Roß-84] H. Roßbach und B. Eichler, *Adsorption von metallen auf metallischen oberflächen und möglichkeiten ihrer nutzung in der kernchemie, ermittlung von adsorptionseigenschaften mit dem rechenprogramm AMO*, Akademie der Wissenschaften der DDR, Zentralinstitut für kernforschung Rossendorf bei Dresden, ZFK-527 (Juni 1984).

[Sau-84] J. Sauvage, C. Bourgeois, A. Caruette, P. Kilcher, J. Obert, J. Oms, J. C. Putaux, B. Roussi re, A. Ferro, J. Fournet, L. Kotfila, C. F. Liang, P. Paris, M. G. Pourquet and G. Cornudet, Proceedings of the TRIUMF-ISOL Workshop, Qu bec, Canada, TRIUMF Report No. TRI-84-1 (June 1984).

[Sav-02] G. Savard, *Development and operation of gas catchers to thermalize fusion-evaporation and fragmentation products*, 14<sup>th</sup> International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques related to their Applications (EMIS 14), Victoria, Canada, (May 2002) to be published in Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.

[Sch-75] W.-D. Schmidt-Ott, R. L. Mlekodaj, E. H. Spejewski and H. K. Carter, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 124 (1975) 83.

[Sla-1] <http://www.slac.stanford.edu/pubs/icfa/summer98/paper3/paper3.pdf>

[Sod-1] <http://www.webelements.com/webelements/elements/text/Na/comp.html>

[Spi-94] *The SPIRAL radioactive ion beam facility*, GANIL Report R 94 02 (1994).

[Spi-02] <http://www.ganil.fr/research/developments/spiral/index.html>

[St -99] H. St cker, F. Jundt, G. Guillaume, *Toute la physique*, 1<sup>er</sup> et 2<sup> me</sup> cycles, Ecoles d'ing nieurs, Edition Dunod (1999), ISBN 2 10 003942 2.

[S m-90] K. S mmerer et al., *Target fragmentation of Au and Th by 2.6 GeV protons*, Physical Review C, Volume 42, N  6 (1990) 2546-2561.

[S m-00] K. S mmerer and B. Blank, *Modified empirical parametrization of fragmentation cross-sections*, Physical Review C, Volume 61, N  3 (2000) 034607.

[Sys-1] logiciel SYSTUS, ESI Group, Engineering Systems International, PAM – System International.

[Tak-95] N. Takahashi et al., *Z. Phys.*, B98 (1995) 347.

[Tas-89] P. Taskinen et al., *Efficiency and delay of the fission ion guide for on-line mass separation*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A281 (1989) 539-546.

[Tus-03] O. Tuske, Communication privée.

[Val-68] K. Valli, E. K. Hyde, *Physical Review*, 176 (1968) 1377.

[Ver-97] L. Vermeeren et al., *Mono-isotopic beams of exotic nuclei produced by a universal on-line laser ion source*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B126 (1997) 81-84.

[Vil-97] A. C. C. Villari and the SPIRAL group, *News from the SPIRAL project at GANIL*, Nuclear Physics, A616 (1997) 21c-28c.

[Vil-02] A. C. C. Villari and the SPIRAL group, *First results at SPIRAL/GANIL*, The 14<sup>th</sup> International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques related to their Applications, Victoria, Canada (Mai 2002), to be published in Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.

[Wel-96] R. F. Welton, A. Piotrowski, G. D. Alton and S. N. Murray, *Effusive flow delay times for gaseous species in a compact rf ion source*, Proceedings of the 6<sup>th</sup> International Conference on Ion Sources, Part II, Rev. Sci. Instrum., 67 (1996) 1353.

[Wie-75] W. Wieseahn, G. Bischoff and J. D'Auria, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 129 (1975) 187.

[Wol-75] H. Wollnik, H. G. Wilhelm, G. Röbig and H. Jungclas, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 127 (1975) 539.

[Wol-95] *Handbook of Ion Sources*, éd. B. Wolf, CRC Press, Boca Ratan (1995).

[Wu-88] W. K. Wu, B. A. Huber and K. Wiesemann, *Cross sections for electron capture by neutral and charged particles in collisions with He*, Atomic Data and Nuclear Data Tables, volume 40, n°1 (September 1988) 57.

[Wu-89] W. K. Wu, B. A. Huber and K. Wiesemann, *Cross sections for electron capture by neutral and charged particles in collisions with He*, Atomic Data and Nuclear Data Tables, volume 42, n°1 (May 1989) 157.

[Xu-93] H. J. Xu et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A333 (1993) 274.

[Yan-91] Q. Yang, D. J. O'Connor and Z. Wang, *Empirical formulae for energy loss straggling of ions in matter*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B61 (1991) 149-155.

[Yos-87] M. Yoshii et al., *The ion-guide isotope separator on-line at the Tohoku University Cyclotron*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B26 (1987) 410-418.

[Zie-77] J. F. Ziegler and H. H. Andersen, *Hydrogen : stopping powers and ranges in all elements*, Volume 3 of *The stopping and range of ions in matter*, Pergamon, New York, 1977.

[Zie-85] J. F. Ziegler, J. P. Biersack and U. Littmark, *The stopping and range of ions in solids*, Volume 5 of *The stopping and range of ions in matter*, Pergamon, New York, 1985.



# ANNEXE A

## *Représentation paramétrique de la section efficace totale de réaction*

Pour pouvoir établir une représentation paramétrique de la section efficace totale de réaction, il est nécessaire de définir quelques paramètres. Nous allons, pour cela, nous placer dans le référentiel du centre de masse.

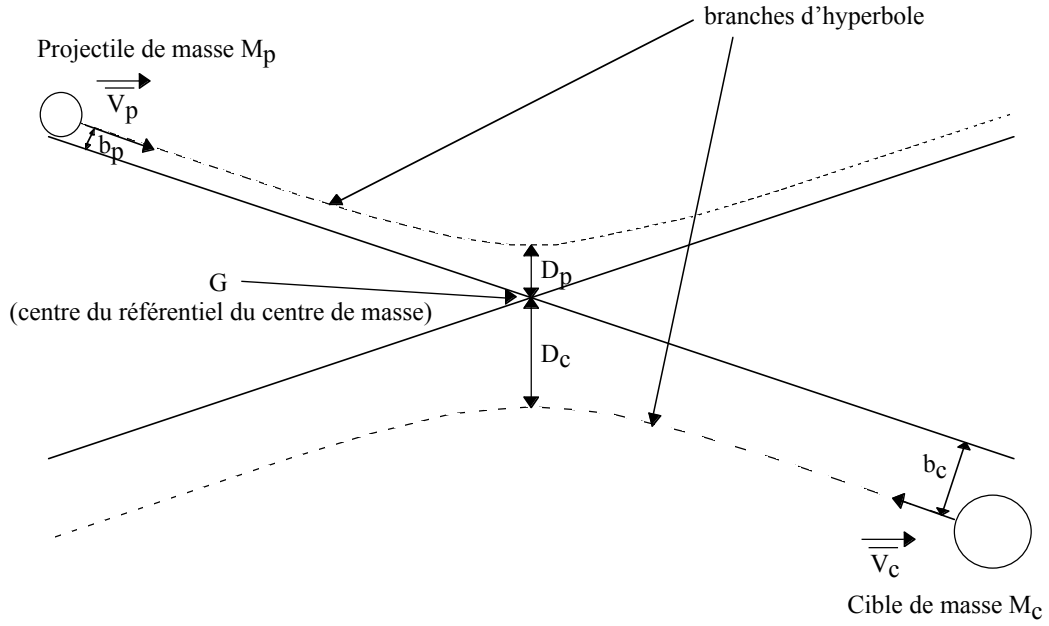
### **A.1 Définitions dans le référentiel du centre de masse**

Les paramètres de la réaction sont représentés, dans le référentiel du centre de masse, dans la figure A-1. On définit les paramètres suivant :

- $b_p$  et  $b_c$ , les paramètres d'impact du noyau projectile et celui du noyau cible.  $b = b_p + b_c$  est le paramètre d'impact d'une réaction nucléaire entre un noyau projectile et un noyau cible.
- $D_p$  et  $D_c$ , la distance minimale d'approche entre le centre de masse et le centre du noyau projectile et celle entre le centre de masse et le centre du noyau cible.  $D = D_p + D_c$  est la distance minimale d'approche entre le centre du noyau projectile et celui du noyau cible.
- $\vec{V}_p$  et  $\vec{V}_c$ , les vitesses initiales du noyau projectile et du noyau cible dans le référentiel du centre de masse.
- $\vec{V}'_p$  et  $\vec{V}'_c$ , les vitesses du noyau projectile et du noyau cible, dans le référentiel du centre de masse, à la distance minimale d'approche  $D$ .

Suivant une approche semi-classique, il existe une valeur du paramètre d'impact,  $b_{\max}$ , telle que la distance minimale d'approche,  $D$ , entre le noyau projectile et le noyau cible soit égale à  $R_p$  (rayon du noyau projectile) +  $R_c$  (rayon du noyau cible). C'est-à-dire, pour toutes valeurs de  $b$  telles que  $b \leq b_{\max}$ , on aura une collision nucléaire entre le noyau projectile et le noyau cible ( $D \leq R_p + R_c$ ). La section efficace totale de réaction,  $\sigma_R$ , est directement liée à la valeur de  $b_{\max}$ . Nous allons donc déterminer une représentation paramétrique de  $b_{\max}$ .





**Fig. A-1** – Définition des paramètres de la réaction dans le référentiel du centre de masse

## **A.2 Représentation paramétrique du paramètre d'impact**

Nous ne considérerons pas, dans les calculs, les effets quantiques (approche purement classique). De plus, les calculs qui vont être effectués sont de type non-relativiste. Ils sont donc valables jusqu'à des énergies de l'ordre de la centaine de MeV par nucléon.

La conservation de l'énergie, dans le référentiel du centre de masse, s'exprime de la manière suivante :

$$\frac{1}{2}M_p \bar{V}_p^2 + \frac{1}{2}M_c \bar{V}_c^2 = \bar{V}(D) + \frac{1}{2}M_p \bar{V}_p'^2 + \frac{1}{2}M_c \bar{V}_c'^2 \quad (\text{A-1})$$

où  $\bar{V}(D)$  représente le potentiel d'interaction entre le noyau projectile et le noyau cible à la distance  $D$ . Ce potentiel d'interaction est nul lorsque les deux particules sont infiniment éloignées, d'où l'absence de ce terme dans le premier membre de l'équation A-1.

La somme des quantités de mouvement, dans le référentiel du centre de masse, s'écrit sous la forme :

$$M_p \bar{\vec{V}}_p + M_c \bar{\vec{V}}_c = \vec{0} \quad (\text{A-2})$$

$$\text{et} \quad M_p \bar{\vec{V}}_p' + M_c \bar{\vec{V}}_c' = \vec{0} \quad (\text{A-3})$$

En associant les équations A-1, A-2 et A-3, on obtient :

$$\frac{1}{2} \left( \frac{M_c^2}{M_p} + M_c \right) \bar{V}_c^2 = \bar{V}(D) + \frac{1}{2} \left( \frac{1}{M_p} + \frac{1}{M_c} \right) M_p^2 \bar{V}_p'^2 \quad (\text{A-4})$$

La vitesse de la cible est nulle dans le référentiel du laboratoire. On en déduit :

$$\vec{V}_c = -\vec{V}_G = -\frac{M_p}{M_p + M_c} \vec{V}_p \quad (\text{A-5})$$

où  $V_G$  représente la vitesse du centre de masse dans le référentiel du laboratoire et  $V_p$ , celle du projectile dans le même référentiel. En combinant les équations A-4 et A-5, on obtient :

$$\frac{1}{2}\mu V_p^2 = \bar{V}(D) + \frac{(M_p \bar{V}_p)^2}{2\mu} \quad (\text{A-6})$$

$$\text{avec} \quad \mu = \frac{M_p M_c}{M_p + M_c} \quad \text{masse réduite du système} \quad (\text{A-7})$$

La conservation du moment angulaire, dans le référentiel du centre de masse, s'exprime de la manière suivante :

$$b_p M_p \bar{V}_p + b_c M_c \bar{V}_c = D_p M_p \bar{V}_p' + D_c M_c \bar{V}_c' \quad (\text{A-8})$$

En introduisant, dans cette équation, la somme des quantités de mouvement (équations A-2 et A-3), on obtient :

$$(b_p + b_c) M_c \bar{V}_c = b M_c \bar{V}_c = D M_p \bar{V}_p' = (D_p + D_c) M_p \bar{V}_p' \quad (\text{A-9})$$

La combinaison des équations A-5 et A-9 donne l'expression suivante :

$$b\mu V_p = D M_p \bar{V}_p' \quad (\text{A-10})$$

En associant la conservation du moment angulaire (équations A-10) avec la conservation de l'énergie (équations A-6) et en appelant  $\bar{E}$ , l'énergie disponible dans le référentiel du centre de masse, on obtient une expression dépendant du paramètre d'impact  $b$ , soit :

$$\bar{E} = \frac{1}{2}\mu V_p^2 = \bar{V}(D) + \frac{1}{2\mu} \left( \frac{b\mu V_p}{D} \right)^2 \quad (\text{A-11})$$

On en déduit l'expression du paramètre d'impact, soit :

$$b^2 = D^2 \left( \frac{\bar{E} - \bar{V}(D)}{\bar{E}} \right) \quad (\text{A-12})$$

Si on s'intéresse maintenant au cas particulier où la distance minimale d'approche,  $D$ , est égale à  $R_p + R_c$ , c'est-à-dire, au cas où  $b$  est égal à  $b_{\max}$ , on obtient alors l'expression de  $b_{\max}$ , soit :

$$b_{\max}^2 = (R_p + R_c)^2 \left( \frac{\bar{E} - \bar{V}(R_p + R_c)}{\bar{E}} \right) \quad (\text{A-13})$$

Nous avons ainsi obtenu l'expression du paramètre d'impact  $b_{\max}$ , dont dépend  $\sigma_R$ . Cependant, il reste à déterminer la valeur de  $\bar{V}(R_p + R_c)$  pour définir  $b_{\max}$ . Tant que la distance entre le noyau projectile et le noyau cible est supérieure à  $R_p + R_c$ , l'interaction entre les deux noyaux est purement coulombienne (nous nuancerons cette remarque un peu plus tard). On nomme donc « barrière coulombienne », soit  $\bar{E}_B$ , le potentiel d'interaction  $\bar{V}(R_p + R_c)$  dans le référentiel du centre de masse. Le but, maintenant, est de déterminer cette barrière coulombienne afin que  $b_{\max}$  soit défini.

### **A.3 Barrière coulombienne dans le référentiel du centre de masse**

Il est nécessaire de définir quelques paramètres. Soit :

- $r$ , la distance entre le centre du noyau projectile et celui du noyau cible.
- $Z_p$  et  $Z_c$ , le nombre de protons, respectivement, du noyau projectile et du noyau cible.
- $e$ , la valeur de la charge élémentaire.

La norme de la force d'interaction coulombienne (loi de Coulomb) [Lum-92] entre les deux noyaux est définie par :

$$F = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_p Z_c e^2}{r^2} \quad (\text{A-14})$$

La direction de cette force est définie dans la figure A-2.

Une variation élémentaire du potentiel d'interaction, lorsque le projectile et la cible sont éloignés d'une distance  $r$  et qu'on modifie cette distance d'une variation élémentaire  $dr$ , s'exprime de la manière suivante :

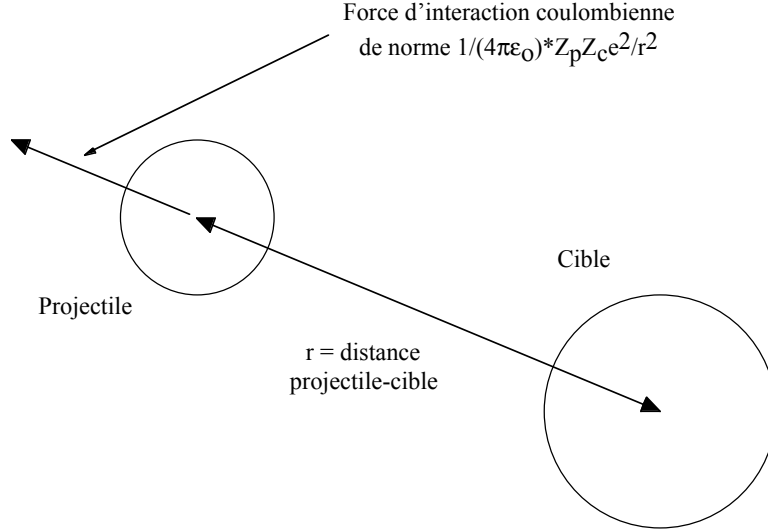
$$d\bar{V}(r) = -F(r)dr \quad (\text{A-15})$$

On peut en déduire la barrière coulombienne, celle-ci représentant la somme des variations élémentaires du potentiel d'interaction d'une distance infinie à la distance  $R_p + R_c$ , soit :

$$\bar{E}_B = \int_{\infty}^{R_p + R_c} d\bar{V}(r) = \bar{V}(R_p + R_c) = - \int_{\infty}^{R_p + R_c} F(r).dr \quad (\text{A-16})$$

En remplaçant  $F$  par son expression (cf. équation A-14), on peut déduire que :

$$\bar{E}_B = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_p Z_c}{R_p + R_c} \quad (\text{A-17})$$



**Fig. A-2** - Représentation de la force d'interaction coulombienne (loi de Coulomb)

Le rayon d'un noyau contenant  $A$  nucléons peut être approché par  $r_0 A^{1/3}$ , où  $r_0$  vaut 1,2 fermi. Soit  $A_p$ , le nombre de nucléons du noyau projectile et  $A_c$ , celui du noyau cible. La barrière coulombienne peut être exprimée de la manière suivante :

$$\bar{E}_B = \frac{1}{r_0} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_p Z_c}{A_p^{1/3} + A_c^{1/3}} \quad (\text{A-18})$$

Le résultat obtenu est une expression qui ne tient compte que de la force d'interaction coulombienne entre le noyau projectile et le noyau cible. Or, les deux noyaux commencent à s'attirer (force d'interaction nucléaire) avant que la distance, qui les sépare, ne devienne égale à  $R_p + R_c$ . La barrière coulombienne est donc plus faible que celle que nous avons calculée. Cependant, cette valeur n'est pas très différente et la représentation paramétrique de l'équation A-18 reste valable si on remplace  $r_0$  par  $R_e$ . Ce paramètre dépend du couple projectile-cible, mais reste très proche de 1,2 fermi.

Finalement, la barrière coulombienne, dans le référentiel du centre de masse, s'exprime de la manière suivante :

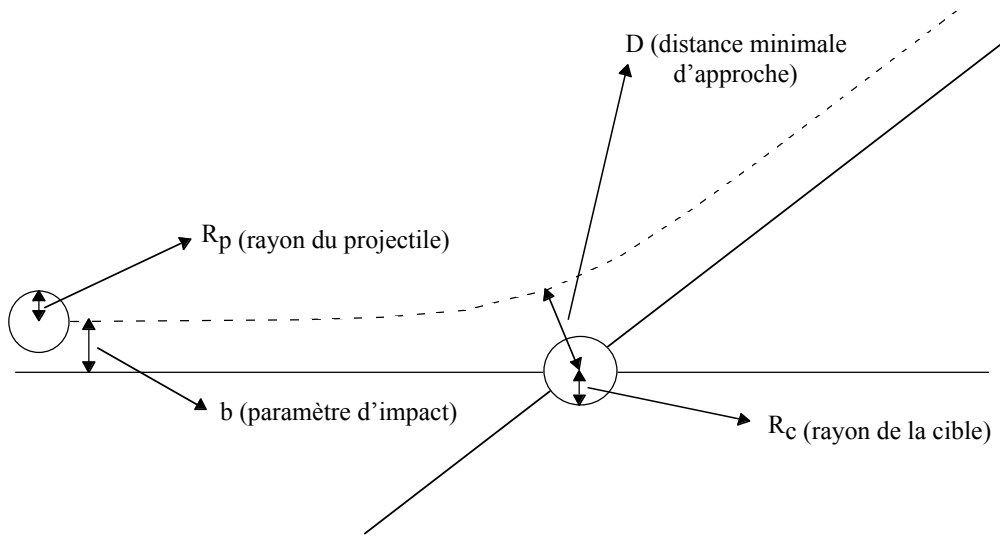
$$\bar{E}_B = \bar{V}(R_p + R_c) = \frac{1}{R_e} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_p Z_c}{A_p^{1/3} + A_c^{1/3}} \quad (\text{A-19})$$

où  $e^2/4\pi\epsilon_0$  vaut environ 1,44 MeV.fermi et  $R_e$  reste très proche de 1,2 fermi. En prenant ces unités, la barrière coulombienne est exprimée en MeV.

La barrière coulombienne, dans le référentiel du centre de masse, est maintenant définie. Il en est donc de même du paramètre d'impact  $b_{\max}$  (cf. équation A-13). Nous allons maintenant établir la relation entre la section efficace totale de réaction et le paramètre d'impact  $b_{\max}$ .

#### **A.4 Dédution de la section efficace totale de réaction**

Nous avons vu précédemment (cf. partie A.1) que, pour toute valeur du paramètre d'impact inférieure ou égale à  $b_{\max}$ , il se produit une collision nucléaire. La représentation géométrique du paramètre d'impact, dans le référentiel du laboratoire, est donnée par la figure A-3.



**Fig. A-3** - Paramètre d'impact dans le référentiel du laboratoire

Cette représentation géométrique du paramètre d'impact permet de déduire que la section efficace totale de réaction,  $\sigma_R$ , représente la surface d'un disque de rayon  $b_{\max}$ , soit :

$$\sigma_R = \pi(b_{\max})^2 \quad (\text{A-20})$$

La combinaison des équations A-7, A-11, A-13, A-19 et A-20 donne la représentation paramétrique suivante de la section efficace totale de réaction, soit :

$$\sigma_R = \pi(R_p + R_c)^2 \left( 1 - \frac{\frac{1}{R_c} \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right) \frac{Z_p Z_c}{A_p^{1/3} + A_c^{1/3}}}{\frac{A_p A_c}{A_p + A_c} \left( \frac{E_p}{A_p} \right)} \right) \quad (\text{A-21})$$

où  $E_p/A_p$  représente l'énergie du projectile, en MeV/nucléon, dans le référentiel du laboratoire.  $e^2/4\pi\epsilon_0$  vaut environ 1,44 MeV.fermi et  $R_c$  est de l'ordre de 1,2 fermi.

On peut donc conclure que la section efficace totale de réaction dépend de la nature du projectile, de l'énergie du projectile et de la nature de la cible. L'ordre de grandeur du premier terme de  $\sigma_R$ , soit  $\pi(R_p+R_c)^2$ , tourne autour de quelques dixièmes à quelques barns (1 barn valant  $10^{-24} \text{ cm}^2$ ). Cependant, si l'énergie du projectile est trop faible (l'ordre de grandeur de la valeur limite tourne autour de quelques MeV/nucléon), la section efficace totale de réaction devient nulle, ce qui veut dire que le projectile ne franchira pas la barrière coulombienne (cela se traduit dans l'équation A-21 par une valeur négative ou nulle du terme entre parenthèses). L'exception, déductible de l'équation A-21, est dans le cas où le projectile est un neutron, car évidemment, dans ce cas, il n'y a pas de barrière coulombienne à franchir.

La représentation paramétrique de la section efficace totale de réaction a été obtenue dans le cadre d'une approximation classique non-relativiste. Cependant, cette approximation permet d'avoir une notion, tout à fait correcte, des ordres de grandeur mis en jeu dans les paramètres de quantification des réactions nucléaires.



## ANNEXE B

### *Diffusion d'éléments radioactifs dans une cible et application à des cas particuliers*

#### **B.1 Diffusion d'éléments radioactifs dans une cible**

Nous devons définir quelques paramètres qui serviront, par la suite, dans les calculs.  
Soit :

- $T$ , la température de la cible. Cette température est supposée homogène.
- $C(p,t)$ , la concentration de l'élément radioactif étudié (nombre d'atomes par unité de volume) en un point  $p$  de la cible et à l'instant  $t$ .
- $q(p,t)$ , le taux de production, par seconde et par unité de volume, de l'élément radioactif étudié, en un point  $p$  de la cible et à l'instant  $t$ .

Exprimons, dans un premier temps, la première loi de Fick [Fic-85] :

$$\vec{J}(p,t) = -D(p,t) \cdot \overrightarrow{\text{Grad}}(C(p,t)) \quad (\text{B-1})$$

où  $\vec{J}(p,t)$  (en  $\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ) représente le vecteur densité de flux, de l'élément radioactif étudié, par unité de surface et par unité de temps, en un point  $p$  de la cible et à l'instant  $t$ .  $D(p,t)$  est le coefficient de diffusion (en  $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ ) en un point  $p$  de la cible et à l'instant  $t$ . Il dépend de la nature de l'atome qui diffuse, de la nature de la cible et de la température. Il est exprimé de la manière suivante [Lan-70] :

$$D(p,t) = D_0(p,t) e^{\left( -\frac{E_a(p,t)}{k_B T(p,t)} \right)} \quad (\text{B-2})$$

où  $D_0$  (en  $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ ) et  $E_a$  (en eV) représentent les coefficients d'Arrhenius.



On a supposé que la température est homogène dans la cible, donc  $T(p,t)$  est indépendant de  $p$ . On suppose également que cette température est constante dans le temps, donc  $T(p,t)$  est indépendant de  $t$ .

$E_a(p,t)$  représente l'énergie d'activation pour un déplacement de l'atome radioactif qui diffuse. Ce paramètre traduit une notion de barrière de potentiel à franchir. La notion de compétition avec l'énergie thermique apparaît dans l'équation B-2, car le rapport  $E_a$  sur  $k_B T$  apparaît dans l'équation. Plus la température est élevée, plus le rapport des deux termes est faible et donc, plus le coefficient de diffusion est élevé (l'élément radioactif étudié diffuse plus facilement). Si on suppose que la structure cristalline de la cible ne se modifie pas au cours du temps,  $E_a(p,t)$  est indépendant de  $t$ . Si on suppose également que la structure de la cible est homogène, une énergie d'activation moyenne pourra être utilisée au lieu d'une énergie d'activation dépendant du point  $p$  où l'atome diffusant se trouve.

$D_0(p,t)$ , appelé "facteur de fréquence", est dépendant des paramètres de la maille cristalline et de la fréquence de vibration de l'atome qui diffuse. Il dépend, également, des concentrations de l'élément radioactif étudié et des autres impuretés présentes, car, plus la concentration de l'élément, ou des autres impuretés présentes, augmente, plus les sites et les défauts sont saturés et donc, plus difficile est la diffusion. Cependant, si on suppose que les concentrations de l'élément radioactif étudié et des autres impuretés présentes sont suffisamment faibles pour ne pas perturber la diffusion et si la structure cristalline de la cible est homogène et indépendante du temps, alors  $D_0(p,t)$  est indépendant de  $p$  et de  $t$ .

Finalement, en tenant compte de toutes ces hypothèses, la première loi de Fick peut être exprimée de la manière suivante :

$$\vec{J}(p,t) = -D_0 e^{\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right)} \overrightarrow{\text{Grad}}(C(p,t)) \quad (\text{B-3})$$

Le signe "-" signifie que les atomes se déplacent dans le sens inverse du gradient, c'est-à-dire, qu'ils se déplacent des zones les plus concentrées vers les zones les moins concentrées. Ce signe traduit donc une évolution vers l'équilibre des concentrations.

La deuxième loi de Fick traduit la conservation des éléments : si on considère un volume à étudier, la variation de la concentration de l'élément étudié dans ce volume correspond à la quantité, de l'élément étudié, qui entre ou sort dans ce volume, plus celle qui apparaît ou disparaît dans ce volume. On obtient donc :

$$\iiint_{\text{volume.de.la.cible}} \frac{\partial C(p,t)}{\partial t} d\tau = - \oint\oint_{\text{surface.de.la.cible}} \vec{J}(p,t) \cdot \vec{dS} + \iiint_{\text{volume.de.la.cible}} q(p,t) d\tau - \iiint_{\text{volume.de.la.cible}} \lambda C(p,t) d\tau \quad (\text{B-4})$$

Plaçons-nous dans le cadre d'une diminution, dans le temps, de la concentration de l'élément étudié. Le premier membre de l'équation B-4 est alors négatif. Dans la première intégrale du second membre,  $\vec{dS}$  est un vecteur unitaire de surface, perpendiculaire à la surface, et orienté vers l'extérieur du volume de la cible. L'intégrale double sera donc positive si  $\vec{J}$  traduit un flux vers l'extérieur de la cible et, donc, une diminution de la concentration de

l'élément étudié. C'est pourquoi, un signe "-" est nécessaire devant l'intégrale double pour être compatible avec le premier membre de l'équation, qui est négatif lors d'une diminution temporelle de la concentration de l'élément étudié. La deuxième intégrale du second membre de l'équation correspond à la quantité, de l'élément radioactif étudié, produite dans la cible par seconde. Le dernier terme du second membre traduit la quantité qui disparaît par décroissance radioactive (d'où le signe "-" pour traduire une disparition, car l'intégrale triple est positive).  $\lambda$  (en  $s^{-1}$ ) est la constante de désintégration de l'élément radioactif étudié ( $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$ ).

Pour transformer la deuxième loi de Fick, il est nécessaire de rappeler le théorème d'Ostrogradsky :

$$\oint_{\text{surface d'un volume}} \vec{A} \cdot d\vec{S} = \iiint_{\text{même volume}} \text{div}(\vec{A}) d\tau \quad (\text{B-5})$$

La deuxième loi de Fick devient :

$$\iiint_{\text{volume de la cible}} \frac{\partial C(p,t)}{\partial t} d\tau = \iiint_{\text{volume de la cible}} (-\text{div}(\vec{J}(p,t)) + q(p,t) - \lambda C(p,t)) d\tau \quad (\text{B-6})$$

Cette équation est valable quel que soit le volume étudié. En associant la première loi de Fick (équation B-3) à cette équation, on obtient l'expression suivante :

$$\frac{\partial C(p,t)}{\partial t} = \text{div} \left( D_0 e^{\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right)} \vec{\text{Grad}}(C(p,t)) \right) + q(p,t) - \lambda C(p,t) \quad (\text{B-7})$$

Cette équation représente l'équation de la diffusion dans le cadre particulier suivant :  $D_0$ ,  $E_a$  et  $T$  constants. La résolution de cette équation donne accès à la concentration,  $C(p,t)$ , de l'élément radioactif étudié. Le flux, sortant de la cible, de l'élément radioactif étudié peut ensuite être déduit ainsi que l'efficacité de diffusion de l'élément radioactif produit. L'équation générale de la diffusion est exactement la même équation, mais avec  $D_0$ ,  $E_a$  et  $T$  dépendant de la position  $p$  et du temps  $t$ .

## **B.2 Application à des cas particuliers**

Il est souvent impossible de résoudre analytiquement l'équation de la diffusion (cf. équation B-7), excepté pour de rares cas particuliers. Cependant, si on prend le cas particulier où  $C(p,t)$  est à symétrie sphérique (soit  $C(p,t) = C(r,t)$ ), où  $q(p,t)$  est indépendant de  $p$  et de  $t$  (soit  $q(p,t) = q$ ), où le domaine spatial se limite à une sphère de rayon  $\rho$  et où les conditions aux limites sont  $C(r,0) = 0$  (pas d'atomes radioactifs dans le volume à  $t = 0$ ) et  $C(\rho,t) = 0$ , alors la résolution analytique est possible. La résolution de ce cas particulier est effectuée dans la thèse de L. Maunoury [Mau-98]. Nous présentons donc directement le résultat de ce cas particulier, soit :

$$C(r, t) = 2q \sum_{k=1}^{\infty} \left( \frac{(-1)^{(k+1)}}{\mu_k + \lambda} \right) \frac{\sin\left(\frac{k\pi r}{\rho}\right)}{\frac{k\pi r}{\rho}} \left(1 - e^{-(\mu_k + \lambda)t}\right) \quad (\text{B-8})$$

$$\text{avec} \quad \mu_0 = \frac{\pi^2 D_0 e^{\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right)}}{\rho^2} \quad (\text{en s}^{-1}) \quad (\text{B-9})$$

$$\text{et} \quad \mu_k = \mu_0 k^2 \quad (\text{en s}^{-1}) \quad (\text{B-10})$$

La concentration de l'élément radioactif étudié, pour ce cas particulier (géométrie sphérique de rayon  $\rho$  avec taux de production constant et homogène et  $D_0$ ,  $E_a$  et  $T$  constants), est maintenant connue. Le flux  $\varphi(t)$  de l'élément radioactif étudié, sortant de la sphère, s'exprime de la manière suivante :

$$\varphi(t) = \oint_{\text{surface.de.la.sphère.de.rayon.p}} \vec{J} \cdot d\vec{S} \quad (\text{B-11})$$

En introduisant la première loi de Fick (équation B-3) dans cette équation, on obtient :

$$\varphi(t) = -D_0 e^{\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right)} \oint_{\text{surface.de.la.sphère.de.rayon.p}} \text{Grad}(C(r, t)) \cdot d\vec{S} = -D_0 e^{\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right)} \left( \frac{\partial C(r, t)}{\partial r}(\rho, t) \right) 4\pi\rho^2 \quad (\text{B-12})$$

En remplaçant  $C(r, t)$  par son expression (équation B-8), on obtient l'expression suivante pour le flux :

$$\varphi(t) = D_0 e^{\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right)} \left( \frac{2q}{\rho} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{\mu_k + \lambda} \left(1 - e^{-(\mu_k + \lambda)t}\right) \right) 4\pi\rho^2 = \frac{6Q}{\pi^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\mu_0}{\mu_k + \lambda} \left(1 - e^{-(\mu_k + \lambda)t}\right) \quad (\text{B-13})$$

$$\text{avec} \quad Q = q \frac{4}{3} \pi \rho^3 \quad (\text{B-14})$$

Nous connaissons donc, maintenant, le flux, sortant de la sphère, de l'élément radioactif étudié. Pour déduire l'efficacité de diffusion, il est nécessaire de connaître le taux, de l'élément radioactif étudié, produit dans la sphère. Dans le cas particulier considéré,  $q(p, t)$  est constant et égal à  $q$ . Le taux produit dans la sphère,  $\Pi(t)$ , peut donc être exprimé de la manière suivante :

$$\Pi(t) = \iiint_{\text{volume.de.la.sphère.de.rayon.p}} q d\tau = Q \quad (\text{B-15})$$

L'efficacité de diffusion  $\xi_{\text{diff}}$  recherchée est celle quand le régime permanent est établi. Elle est la limite, quand  $t$  tend vers l'infini, du rapport  $\phi(t)$  sur  $\Pi(t)$ . On obtient le résultat suivant :

$$\xi_{\text{diff}} = \frac{6}{\pi^2} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{k^2 + \frac{\lambda}{\mu_0}} = 3 \frac{\left( \sqrt{\frac{\pi^2 \lambda}{\mu_0}} \coth \left( \sqrt{\frac{\pi^2 \lambda}{\mu_0}} \right) - 1 \right)}{\frac{\pi^2 \lambda}{\mu_0}} \quad (\text{B-16})$$

Cette efficacité représente l'efficacité de diffusion de l'élément radioactif de constante radioactive  $\lambda$ , pour un **taux de production constant et homogène**, dans une **sphère** de rayon  $\rho$  et avec les deux **coefficients d'Arrhenius** ( $D_0$  et  $E_a$ ) et **T constants**.

La résolution analytique de l'équation de diffusion (équation B-7) est possible pour d'autres cas particuliers intéressants, comme, par exemple, pour la diffusion hors d'une fibre de longueur infinie et de rayon  $\rho$  ou encore hors d'une feuille aux dimensions infinies et de demi-épaisseur  $\rho$ . Dans le cas particulier de la feuille, on obtient le résultat suivant :

$$\xi_{\text{diff}} = \frac{8}{\pi^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{(2k+1)^2 + \frac{\lambda}{\mu_0}} = \frac{\tanh \left( \sqrt{\frac{\pi^2 \lambda}{4\mu_0}} \right)}{\sqrt{\frac{\pi^2 \lambda}{4\mu_0}}} \quad (\text{B-17})$$

Cette efficacité représente l'efficacité de diffusion de l'élément radioactif de constante radioactive  $\lambda$ , pour un **taux de production constant et homogène**, dans une **feuille** aux dimensions infinies et de demi-épaisseur  $\rho$  et avec les deux **coefficients d'Arrhenius** ( $D_0$  et  $E_a$ ) et **T constants**.



# ANNEXE C

## *Principe théorique de fonctionnement d'une source d'ions ECR*

Le fonctionnement d'une source d'ions ECR est basé sur la "résonance cyclotronique électronique" entre le mouvement d'un électron placé dans un champ magnétique et une onde électromagnétique haute fréquence (quelques GHz). Pour pouvoir décrire le principe théorique de fonctionnement d'une telle source, nous devons nous intéresser au mouvement des particules chargées dans un champ magnétique.

### **C.1 Mouvement d'une particule chargée dans un champ magnétique**

La force de Lorentz [Lum-92],  $\vec{F}$ , qui régit le mouvement d'une particule chargée dans un champ magnétique  $\vec{B}$ , s'exprime de la manière suivante :

$$\vec{F} = q\vec{v} \wedge \vec{B} \quad (\text{C-1})$$

où  $q$  représente la charge de la particule chargée et  $\vec{v}$ , sa vitesse.

De plus, si on exprime la conservation du flux du champ magnétique à travers une surface fermée, on obtient la relation suivante :

$$\frac{\partial B_{\perp r}}{\partial \perp r} = -\frac{1}{2} \frac{\partial B_{//}}{\partial //} \quad (\text{C-2})$$

avec  $\vec{B}$  orienté suivant la direction  $//$  et  $B_{\perp r}$  représentant la composante orthogonale radiale, donc nulle, du champ magnétique dans la direction  $\perp r$ . Cette équation signifie que les

lignes de champ magnétique convergent si le champ magnétique augmente et divergent dans le cas inverse.

En introduisant cette équation dans la décomposition de la force de Lorentz (équation C-1), on obtient les différentes forces agissant sur une particule en mouvement dans un champ magnétique non-uniforme, soit :

- une force radiale traduisant une focalisation de la particule chargée vers la ligne de champ magnétique dans le cas d'un champ magnétique croissant (défocalisation dans le cas opposé).
- une force parallèle à la ligne de champ magnétique qui s'oppose à l'avancée de la particule dans un champ croissant. Après annulation de la vitesse parallèle, la particule rebrousse chemin et se retrouve dans un champ décroissant. Elle est donc accélérée. On parle alors d'un "effet miroir".
- une force impliquant une accélération ou une décélération du mouvement giratoire de la particule chargée autour de la ligne de champ magnétique et qui traduit, tout simplement, la conservation de l'énergie cinétique.

De plus, à partir de la "Relation Fondamentale de la Dynamique", on peut montrer que le mouvement giratoire, d'une particule chargée, autour d'une ligne de champ magnétique est caractérisé par une fréquence de giration  $f_c$ , appelée "fréquence cyclotron", égale à :

$$f_c = \frac{qB}{2\pi M_p} \quad (C-3)$$

où  $M_p$  représente la masse de la particule chargée.

On en déduit également le rayon de courbure,  $\rho$ , de la trajectoire, soit :

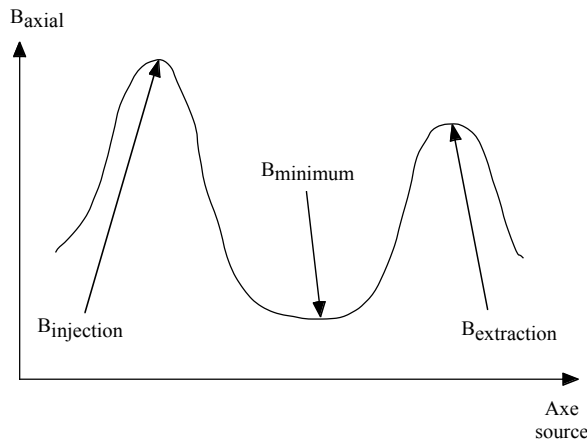
$$\rho = \frac{M_p v_{\perp}}{qB} \quad (C-4)$$

où  $v_{\perp}$  représente la composante, de la vitesse de la particule chargée, orthogonale à la ligne de champ magnétique.  $B\rho$  représente la "rigidité magnétique".

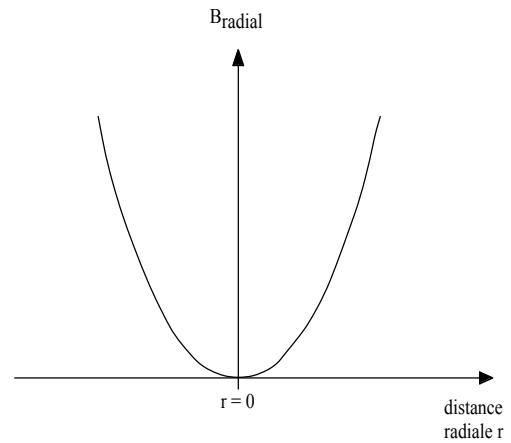
Maintenant que nous avons décrit les caractéristiques du mouvement d'une particule chargée dans un champ magnétique, nous allons nous intéresser à la structure magnétique d'une source d'ions ECR.

## C.2 Structure magnétique d'une source d'ions ECR

Dans une telle source, on utilise une structure magnétique appelée "bouteille magnétique" et constituée de la superposition d'un champ magnétique axial et d'un champ magnétique radial. Le champ magnétique axial, schématisé dans la figure C-1, est constitué d'un minimum central,  $B_{\text{minimum}}$ , et de deux maxima aux extrémités,  $B_{\text{injection}}$  et  $B_{\text{extraction}}$ . Le champ magnétique radial, schématisé dans la figure C-2, est minimal au centre et augmente très rapidement lorsqu'on s'éloigne de l'axe.



**Fig. C-1** - Allure du champ magnétique axial d'une source d'ions ECR



**Fig. C-2** - Allure du champ magnétique radial d'une source d'ions ECR

En considérant les différentes composantes de la force de Lorentz, décrites dans la partie précédente (cf. partie C.1), on comprend que les particules chargées vont se retrouver piégées par l'effet miroir dans cette structure magnétique, si les valeurs de  $B_{\text{injection}}$  et  $B_{\text{extraction}}$  sont suffisamment élevées. Cependant, il existe un "cône de fuite" (dans l'espace des vitesses de la particule et dont l'axe est imposé par la direction de la ligne de champ magnétique sur laquelle se trouve la particule) où la force parallèle à la ligne de champ magnétique n'est pas suffisante pour que la particule rebrousse chemin. Ce cône de fuite est fondamental dans une source ECR, car les particules chargées dont la vitesse est incluse dans ce cône de fuite s'échapperont de la structure magnétique. Nous allons donc déterminer le demi-angle au sommet,  $\varphi_{\text{fuite}}$ , de ce cône de fuite.

## C.3 Caractérisation du cône de fuite

Exprimons le moment magnétique  $\vec{\mu}$  de la particule chargée. Il équivaut, en raison du mouvement giratoire de la particule, à celui d'une spire, c'est-à-dire :

$$\vec{\mu} = I \vec{S} \quad (\text{C-5})$$

$$\text{avec} \quad I = f_c q \quad (\text{C-6})$$



$$\text{et} \quad S = \pi \rho^2 \quad (\text{C-7})$$

où  $I$  représente le courant équivalent au mouvement de la particule et  $S$ , la surface de la spire équivalente au mouvement giratoire de la particule.

Si on remplace la fréquence cyclotron par sa valeur (équation C-3) et le rayon de courbure de la trajectoire par la sienne (équation C-4), le moment magnétique de la particule chargée devient alors :

$$\mu = \frac{1}{2} \frac{M_p v_{\perp}^2}{B} = \frac{E_{\perp}^2}{B} \quad (\text{C-8})$$

où  $E_{\perp}$  représente l'énergie cinétique, de la particule chargée, correspondant à la composante orthogonale, à la ligne de champ magnétique, de la vitesse de la particule chargée.

On considère, maintenant, une particule chargée se trouvant initialement, avec une vitesse  $v_0$ , en un point où le champ magnétique est égal à  $B_0$ . Le vecteur vitesse de la particule, en ce point, fait un angle  $\varphi_0$  avec le vecteur champ magnétique. Exprimons la conservation de l'énergie cinétique :

$$\frac{1}{2} M_p v_0^2 = \frac{1}{2} M_p \left( \frac{v_{\perp 0}}{\sin(\varphi_0)} \right)^2 = \frac{1}{2} M_p \left( \frac{v_{\perp}}{\sin(\varphi)} \right)^2 \quad (\text{C-9})$$

Exprimons également la conservation du moment angulaire :

$$\frac{1}{2} \frac{M_p v_{\perp 0}^2}{B_0} = \frac{1}{2} \frac{M_p v_{\perp}^2}{B} \quad (\text{C-10})$$

Finalement, en combinant les deux équations, on obtient la relation suivante :

$$\frac{\sin^2(\varphi_0)}{B_0} = \frac{\sin^2(\varphi)}{B} \quad (\text{C-11})$$

Pour déterminer le demi-angle au sommet  $\varphi_{\text{fuite}}$  du cône de fuite, il suffit de prendre le cas particulier où la particule rebrousse chemin ( $\varphi = \pi / 2$ ) au point où le champ magnétique est maximal, soit :

$$\varphi_{\text{fuite}} = \arcsin \left( \sqrt{\frac{B_0}{B_{\text{max}}}} \right) \quad (\text{C-12})$$

Toutes les particules, dont l'angle  $\varphi$ , entre le vecteur vitesse et le vecteur champ magnétique, est supérieur à  $\varphi_{\text{fuite}}$  au point où le champ magnétique est égal à  $B_0$ , se retrouvent

piégées dans la structure magnétique de la source d'ions ECR. L'angle de fuite minimal possible est alors représenté par :

$$\varphi_{\text{fuite min}} = \arcsin\left(\frac{1}{\sqrt{R}}\right) \quad (\text{C-13})$$

$$\text{avec} \quad R = \frac{B_{\text{max}}}{B_{\text{min}}} \quad (\text{C-14})$$

R représente le "rapport miroir" de la source d'ions ECR. Plus la valeur de R est élevée, plus l'angle de fuite minimal est faible et donc, plus le temps de confinement dans la source est élevé. La valeur de R, dans une source d'ions ECR, est généralement proche de 2.

Maintenant que nous avons caractérisé la source d'ions ECR, intéressons-nous à son fonctionnement.

#### **C.4 Fonctionnement d'une source d'ions ECR**

Dans une telle source, le plasma est généré grâce à l'injection d'ondes électromagnétiques haute fréquence (fréquence  $f_{\text{HF}}$  de quelques GHz). En effet, lorsque la fréquence de giration  $f_c$  d'un électron devient égale à la fréquence  $f_{\text{HF}}$ , l'électron perd ou gagne de l'énergie (suivant l'angle, aléatoire, entre le vecteur champ électrique de l'onde et le vecteur vitesse de l'électron) par "résonance cyclotronique électronique". L'électron entrera plusieurs fois en résonance en raison de son piégeage dans la structure magnétique et gagnera globalement, statistiquement et de façon stochastique, de l'énergie [Gel-82]. On parle alors de "chauffage de l'électron" qui correspond à une augmentation de sa vitesse orthogonale à la ligne de champ magnétique. D'après l'équation C-4, cela se traduit également par une augmentation du rayon de courbure de la trajectoire de l'électron. La résonance est caractérisée par une valeur particulière,  $B_{\text{rés}}$ , du champ magnétique, qui, d'après l'équation C-3, s'exprime de la manière suivante :

$$B_{\text{rés}} = \frac{2\pi M_e f_{\text{HF}}}{q_e} \quad (\text{C-15})$$

où  $M_e$  représente la masse de l'électron et  $q_e$ , sa charge. On parle alors, pour une source d'ions ECR, d'une "nappe de résonance" qui correspond au volume de la source où le champ magnétique est très proche ou égal à  $B_{\text{rés}}$  (volume où se produisent les résonances). Pour qu'une source d'ions ECR puisse fonctionner, la valeur de  $B_{\text{rés}}$  doit être comprise entre la valeur de  $B_{\text{min}}$  et celle du champ magnétique à l'extraction.



# ANNEXE D

## *Représentation paramétrique du nombre total de réactions nucléaires*

### **D.1 Représentation paramétrique dans le cas général**

Avant de pouvoir établir une représentation paramétrique du nombre total de réactions nucléaires, il est nécessaire de définir quelques paramètres qui nous seront utiles par la suite. Soit :

- $E_P$ , l'énergie initiale des noyaux projectiles.
- $R$ , le parcours d'un noyau projectile d'énergie  $E_P$  dans une cible de même nature que celle utilisée (la notion de parcours n'a pas de sens pour des neutrons).
- $x_0$ , l'épaisseur de la cible.
- $x$ , l'épaisseur de cible traversée par un noyau projectile à un instant donné ( $x \leq x_0$  et  $x \leq R$ ). On l'appellera par la suite « abscisse  $x$  ».
- $E_P(x)$ , l'énergie d'un noyau projectile à l'abscisse  $x$ .
- $N$ , le nombre d'atomes cible par  $\text{cm}^3$ .
- $\Phi_0$ , le nombre de projectiles incidents, par seconde, sur la cible.
- $\Phi(x)$ , le nombre de projectiles incidents, par seconde, à l'abscisse  $x$ .
- $\sigma_R(E_P(x))$ , la section efficace totale de réaction, en  $\text{cm}^2$ , à l'abscisse  $x$ .

Le nombre total de réactions nucléaires,  $d\tau_R(x)$ , par seconde et pour une épaisseur  $dx$  (en cm) de cible à l'abscisse  $x$ , peut être quantifié de la manière suivante :

$$d\tau_R(x) = -d\Phi(x) = \Phi(x)\sigma_R(E_P(x))Ndx \quad \textbf{(D-1)}$$

La résolution de l'équation différentielle, formée par les deux derniers membres de l'équation, donne une expression du nombre de projectiles incidents, par seconde, à l'abscisse  $x$ , soit :

$$\Phi(x) = \Phi_0 e^{-N \int_0^x (\sigma_R(E_P(x))) dx} \quad (\text{D-2})$$

L'intégration des deux premiers membres de l'équation D-1, sur l'épaisseur de cible traversée par le faisceau incident, donne le nombre total de réactions nucléaires  $\tau_R$ , par seconde, dans toute la cible, soit :

$$\tau_R = \Phi_0 \left( 1 - e^{-N \int_0^{x_0, \text{ou } R. (\text{si } R < x_0)} (\sigma_R(E_P(x))) dx} \right) \quad (\text{D-3})$$

Cette représentation paramétrique du nombre total de réactions nucléaires peut être simplifiée dans des cas bien particuliers. Nous allons maintenant étudier quelques-uns de ces cas.

## **D.2 Cas particulier où les projectiles sont des neutrons**

### **D.2.1 Cas général**

Une représentation paramétrique de la section efficace totale de réaction est donnée par l'équation A-21 de l'**annexe A**. D'après cette équation, la section efficace totale de réaction est, en première approximation, constante dans le cas où les projectiles sont des neutrons. De plus, la notion de parcours du projectile n'a pas de sens pour des neutrons. Le nombre total de réactions nucléaires, par seconde, devient alors :

$$\tau_R = \Phi_0 \left( 1 - e^{-N \sigma_R x_0} \right) \quad (\text{en s}^{-1}) \quad (\text{D-4})$$

$$\text{avec } \sigma_R = \pi (R_n + R_c)^2 \quad (\text{en cm}^2) \quad (\text{D-5})$$

où  $\Phi_0$  représente le nombre de neutrons incidents par seconde,  $N$ , le nombre d'atomes cible par  $\text{cm}^3$ ,  $x_0$ , l'épaisseur de la cible en cm,  $R_n$ , le rayon du neutron (égal à  $r_0$ , soit 1,2 fermi) et  $R_c$ , le rayon du noyau cible (égal à  $r_0 A_c^{1/3}$  en première approximation).

### **D.2.2 Cas particulier**

Le nombre d'atomes cible par  $\text{cm}^3$ ,  $N$ , peut s'écrire sous la forme approchée suivante :

$$N \approx \frac{\rho_c}{m_n A_c} \quad (\text{D-6})$$

où  $\rho_c$  est la masse volumique de la cible (en  $\text{g/cm}^3$ ) et  $m_n$ , la masse du nucléon (en g). De plus, le rayon d'un noyau contenant A nucléons peut être approché par  $r_0 A^{1/3}$  avec  $r_0$  égal à  $1,2 \cdot 10^{-13}$  cm et la masse du nucléon vaut environ  $1,66 \cdot 10^{-24}$  g. Donc, l'exposant de l'exponentielle, dans l'équation D-4, peut être exprimé sous la forme suivante :

$$N\sigma_R x_0 \approx \frac{\rho_c}{m_n A_C} \pi r_0^2 \left(1 + A_C^{1/3}\right)^2 x_0 \approx 2,82 \cdot 10^{-2} \rho_c x_0 \left( \frac{1}{A_C^{1/2}} + \frac{1}{A_C^{1/6}} \right)^2 \quad (\text{D-7})$$

où  $\rho_c x_0$  représente l'épaisseur de la cible en  $\text{g/cm}^2$ .

Finalement, si l'exposant de l'exponentielle est très inférieur à 1, on effectue un développement limité à l'ordre 1 de l'exponentielle et le nombre total de réactions nucléaires, par seconde, dans la cible s'exprime alors de la manière suivante :

$$\tau_R \approx \Phi_0 N\sigma_R x_0 \quad (\text{D-8})$$

$$\text{si} \quad \rho_c x_0 \left( \frac{1}{A_C^{1/2}} + \frac{1}{A_C^{1/6}} \right)^2 \ll 35,5 \quad (\text{D-9})$$

où  $\Phi_0$  représente le nombre de neutrons incidents par seconde, N, le nombre d'atomes cible par  $\text{cm}^3$ ,  $\sigma_R$ , la section efficace totale de réaction donnée par l'équation D-5 en  $\text{cm}^2$ ,  $x_0$ , l'épaisseur de la cible en cm et  $\rho_c x_0$ , l'épaisseur de la cible en  $\text{g/cm}^2$ .

### **D.3 Cas particuliers pour des noyaux projectiles chargés**

Les noyaux projectiles ne sont pas des neutrons. La notion de parcours, R, du projectile a donc un sens. D'après la représentation paramétrique de la section efficace totale de réaction donnée par l'équation A-21 de l'**annexe A**, on peut majorer la section efficace totale de réaction par :

$$\sigma_R \leq \pi (R_P + R_C)^2 \quad (\text{D-10})$$

Par conséquent, si on utilise la forme approchée du nombre d'atomes cible, N, par  $\text{cm}^3$  donnée par l'équation D-6, on peut majorer l'exposant de l'exponentielle, dans la formule donnant le nombre total de réactions nucléaires,  $\tau_R$ , par seconde dans la cible (cf. équation D-3), par l'expression suivante :

$$N \int_0^{x_0 \text{ ou } R.(\text{si } R < x_0)} \sigma_R(E_P(x)) dx \leq \frac{\rho_c x_0}{m_n A_C} \pi (R_P + R_C)^2 \quad (\text{D-11})$$

où  $x_R$  représente l'épaisseur de cible, en cm, traversée par le faisceau de projectiles incidents, donc  $x_R$  est égal à l'épaisseur  $x_0$  de la cible ou au parcours  $R$  des projectiles dans une cible de cette nature, si  $R < x_0$ . Le rayon d'un noyau contenant  $A$  nucléons peut être approché par  $r_0 A^{1/3}$  avec  $r_0$  égal à  $1,2 \cdot 10^{-13}$  cm et la masse du nucléon vaut environ  $1,66 \cdot 10^{-24}$  g. La majoration représentée par l'équation D-11 devient alors :

$$N \int_0^{x_0 \text{ ou } R. (\text{si } R < x_0)} \sigma_R(E_P(x)) dx \leq 2,82 \cdot 10^{-2} \rho_C x_R \left( \frac{A_P^{1/3}}{A_C^{1/2}} + \frac{1}{A_C^{1/6}} \right)^2 \quad (\text{D-12})$$

où  $\rho_C x_R$  représente l'épaisseur de cible, en  $\text{g/cm}^2$ , traversée par le faisceau de projectiles incidents.

Finalement, si le terme majorant de l'équation D-12 est très inférieur à 1, on peut effectuer un développement limité à l'ordre 1 de l'exponentielle contenue dans la formule donnant le nombre total de réactions nucléaires,  $\tau_R$ , par seconde, dans la cible (cf. équation D-3). Le nombre total de réactions nucléaires s'obtient alors sous la forme simplifiée suivante :

$$\tau_R \approx \Phi_0 N \int_0^{x_R} \sigma_R(E_P(x)) dx \quad (\text{D-13})$$

$$\text{si} \quad \rho_C x_R \left( \frac{A_P^{1/3}}{A_C^{1/2}} + \frac{1}{A_C^{1/6}} \right)^2 \ll 35,5 \quad (\text{D-14})$$

où  $\rho_C x_R$  représente l'épaisseur de cible, en  $\text{g/cm}^2$ , traversée par le faisceau de projectiles incidents et  $x_R$ , la même épaisseur en cm. Pour savoir si ces deux termes représentent l'épaisseur de la cible (en  $\text{g/cm}^2$  et en cm) ou le parcours  $R$  des projectiles (en  $\text{g/cm}^2$  et en cm) dans une cible de cette nature, il suffit de lire la valeur du parcours donnée (en  $\text{g/cm}^2$ ) dans les tables de parcours de Northcliffe et Schilling [Nor-70], de comparer cette valeur à l'épaisseur de la cible (en  $\text{g/cm}^2$ ) et de prendre pour  $\rho_C x_R$  la valeur la plus faible, car cette valeur représente l'épaisseur de cible vraiment traversée par le faisceau de projectiles incidents. Enfin,  $\Phi_0$  représente le nombre de noyaux projectiles (autres que des neutrons) incidents par seconde,  $N$ , le nombre d'atomes cible par  $\text{cm}^3$  et  $\sigma_R(E_P(x))$ , la section efficace totale de réaction, donnée par l'équation A-21 de l'annexe A, en  $\text{cm}^2$ .

De plus, si la section efficace totale de réaction est quasi-constante sur l'épaisseur de cible traversée par le faisceau, on peut faire l'approximation supplémentaire suivante :

$$\tau_R \approx \Phi_0 N \sigma_R x_R \quad (\text{D-15})$$

valable si l'inégalité D-14 est vérifiée et si  $\sigma_R$  est quasi-constante sur l'épaisseur  $x_R$  de cible traversée par le faisceau.

## ANNEXE E

### *Comparaisons entre une approximation de la vitesse de l'écoulement gazeux dans un guide d'ions et une approximation de la vitesse moyenne induite par un champ électrique*

#### **E.1 Détermination d'une approximation de la vitesse de l'écoulement gazeux dans un guide d'ions**

Les définitions de quelques paramètres du guide d'ions sont établies dans la figure E-1. En considérant, en première approximation, que la pression est à peu près homogène à l'intérieur du guide d'ions et que la vitesse de l'écoulement gazeux est environ constante sur une section du guide d'ions, la conservation du débit gazeux est exprimée de la manière suivante :

$$Vp_g = V_g.S_g \approx V.S \quad (\text{E-1})$$

D'après l'équation IV-11 (cf. partie IV.1.2.1), la vitesse de pompage à l'entrée du trou de sortie du guide d'ions ( $Vp_g$ ) est environ égale à la conductance du trou de sortie du guide d'ions ( $C_g$ ). Cette dernière est définie par l'équation IV-13 (cf. partie IV.1.2.1). Par conséquent, d'après l'équation E-1, la vitesse de l'écoulement gazeux à l'entrée du trou de sortie du guide d'ions est environ égale à :

$$V_g = \frac{Vp_g}{S_g} \approx \frac{C_g}{S_g} \approx \frac{0,45(\phi_g)^2 \cdot 10^3}{\pi \left( \frac{\phi_g \cdot 10^{-1}}{2} \right)^2} \quad (\text{E-2})$$

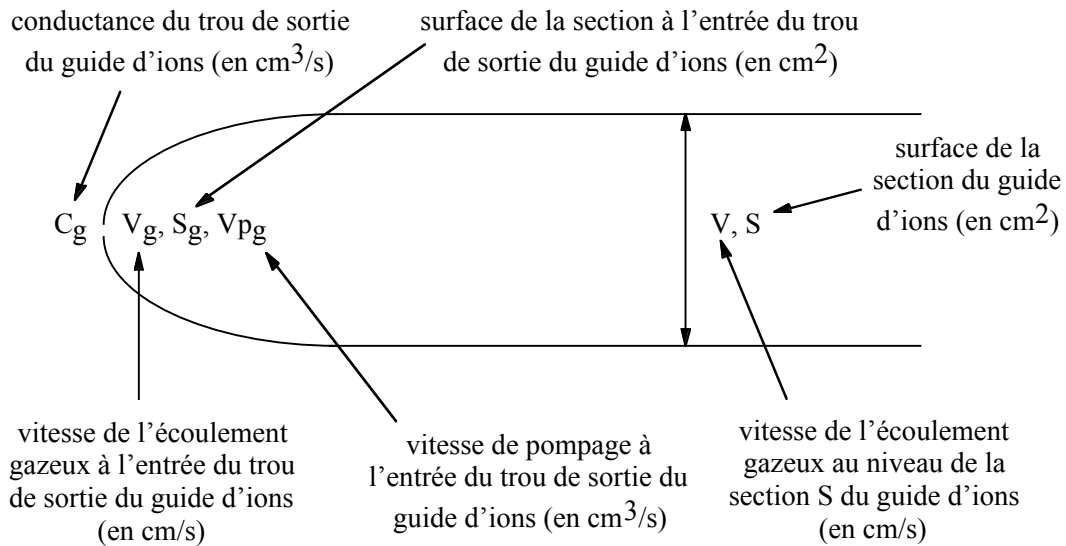


où  $\phi_g$  représente le diamètre, en mm, du trou de sortie du guide d'ions. L'application numérique donne une vitesse d'écoulement, à l'entrée du trou de sortie du guide d'ions, d'environ  $6.10^4$  cm/s.

De même, d'après l'équation E-1, la vitesse de l'écoulement gazeux au niveau de la section S du guide d'ions est environ égale à :

$$V \approx \frac{Vp_g}{S} \approx \frac{C_g}{S} \approx \frac{0,45(\phi_g)^2 \cdot 10^3}{\pi \left( \frac{\phi \cdot 10^{-1}}{2} \right)^2} \quad (\text{E-3})$$

où  $\phi$  représente le diamètre, en mm, de la section S du guide d'ions.



**Fig. E-1** – Définitions de quelques paramètres du guide d'ions

## **E.2 Détermination d'une approximation de la vitesse moyenne induite par un champ électrique**

### **E.2.1 Détermination du libre parcours moyen dans l'hélium**

Pour une pression d'hélium  $P_g$ , le nombre d'atomes d'hélium  $N_{He}$  par unité de volume est égal à :

$$N_{He} = \frac{\rho_T \cdot P_g}{M_{He}} N_A \quad (\text{E-4})$$

où

- $\rho_T$  représente la masse volumique de l'hélium par unité de pression et à la température T.
- $M_{He}$ , la masse molaire de l'hélium.
- $N_A$ , le nombre d'Avogadro.

Le libre parcours moyen  $\lambda$  dans l'hélium est égal à :

$$\lambda = \frac{1}{N_{\text{He}} \sigma_T} = \frac{M_{\text{He}}}{\rho_T P_g N_A} \frac{1}{\pi (R_{\text{He}} + R_{\text{ion}})^2} \quad (\text{E-5})$$

où

- $\sigma_T$  représente la section efficace totale de collision entre un atome d'hélium et l'ion considéré.
- $R_{\text{He}}$ , le rayon de l'atome d'hélium.
- $R_{\text{ion}}$ , le rayon de l'ion considéré.

### **E.2.2 Déduction de la vitesse moyenne acquise entre deux collisions**

L'application de la relation fondamentale de la dynamique (RFD), pour un ion, initialement au repos, plongé dans un champ électrique, donne le résultat suivant :

$$V_{\text{ion}}(t) = \frac{qE}{m} t \quad (\text{E-6})$$

où

- $q$  représente la charge de l'ion.
- $m$ , sa masse.
- $E$ , le champ électrique appliqué.
- $V_{\text{ion}}(t)$ , la vitesse de l'ion à l'instant  $t$ .

Soit  $t_\lambda$ , l'intervalle de temps entre deux collisions. La vitesse moyenne acquise par l'ion, sur cet intervalle de temps, est donnée, d'après l'équation E-6, par la relation suivante :

$$\overline{V_{\text{ion}}} = \frac{qE}{2m} t_\lambda \quad (\text{E-7})$$

où  $\overline{V_{\text{ion}}}$  représente la vitesse moyenne acquise par l'ion. L'intégration de l'équation E-6 permet d'obtenir une deuxième expression du libre parcours moyen dans l'hélium, soit :

$$\lambda = \frac{qE}{2m} t_\lambda^2 \quad (\text{E-8})$$

L'association des équations E-7 et E-8 permet d'obtenir une nouvelle expression de la vitesse moyenne acquise entre deux collisions, soit :

$$\overline{V_{\text{ion}}} = \sqrt{\frac{qE}{2m}} \sqrt{\lambda} \quad (\text{E-9})$$

Finalement, en remplaçant  $\lambda$  par son expression mathématique obtenue dans l'équation E-5, la vitesse moyenne acquise entre deux collisions devient égale à :

$$\overline{V_{\text{ion}}} = \sqrt{\frac{qE}{2m} \frac{M_{\text{He}}}{\rho_T P_g N_A} \frac{1}{\pi(R_{\text{He}} + R_{\text{ion}})^2}} \quad (\text{E-10})$$

Cette vitesse moyenne acquise entre deux collisions est utilisée, en première approximation, comme vitesse moyenne induite par le champ électrique, pour les comparaisons entre la vitesse de l'écoulement gazeux dans un guide d'ions et la vitesse moyenne induite par un champ électrique.

### E.3 Comparaisons entre les deux vitesses

La comparaison, entre une approximation de la vitesse de l'écoulement gazeux dans un guide d'ions et une approximation de la vitesse moyenne induite par un champ électrique, est effectuée dans le tableau E-1 :

- pour différents diamètres  $\phi$  de section du guide d'ions, en considérant un diamètre du trou de sortie de 1,2 mm (valeur très souvent utilisée pour les guides d'ions conçus).
- pour une température de 20°C, soit une masse volumique de l'hélium de 0,166 g/l/atm.
- pour des ions de différents rapports « nombre de charges Q / nombre de nucléons A ».
- pour différentes valeurs de somme «  $R_{\text{He}} + R_{\text{ion}}$  » de rayons atomiques.
- pour différentes valeurs du rapport « champ électrique E / pression  $P_g$  ».

E/ $P_g$ (en V/m/atm)	rapport Q/A	$R_{\text{He}} + R_{\text{ion}}$ (en Å)	vitesse induite par le champ électrique	vitesse de l'écoulement gazeux pour $\phi = 1,2$ mm	vitesse de l'écoulement gazeux pour $\phi = 10$ mm	vitesse de l'écoulement gazeux pour $\phi = 50$ mm
$10^3$	0,1	1	$8.10^3$ cm/s	$6.10^4$ cm/s	800 cm/s	30 cm/s
		3	$3.10^3$ cm/s			
	0,01	1	$2.10^3$ cm/s			
		3	800 cm/s			
$10^4$	0,1	1	$2.10^4$ cm/s			
		3	$8.10^3$ cm/s			
	0,01	1	$8.10^3$ cm/s			
		3	$3.10^3$ cm/s			
$10^5$	0,1	1	$8.10^4$ cm/s			
		3	$3.10^4$ cm/s			
	0,01	1	$2.10^4$ cm/s			
		3	$8.10^3$ cm/s			

**Tab. E-1** – Comparaisons entre une approximation de la vitesse de l'écoulement gazeux dans un guide d'ions et une approximation de la vitesse moyenne induite par un champ électrique

Ces comparaisons sont extrêmement enrichissantes, car elles nous indiquent que le guide d'ions fonctionne de différentes manières suivant le diamètre de la section concernée du guide :

- au niveau du trou de sortie du guide d'ions, c'est l'écoulement du fluide et les champs électriques qui contrôlent le déplacement des ions, et cela, pour des rapports champ électrique sur pression de l'ordre de  $10^4$  à  $10^5$  V/m/atm. L'écoulement du fluide contrôle tout de même majoritairement le mouvement des ions dans le trou de sortie.
- pour la zone du guide d'ions correspondant à des diamètres de section supérieurs à approximativement 1 centimètre et pour des rapports champ électrique sur pression de l'ordre de  $10^4$  à  $10^5$  V/m/atm, le mouvement des ions est essentiellement contrôlé par le champ électrique.



# ANNEXE F

## *Extraits du Code MI-GI-CHEMIN*

### **F.1 Définition des structures et des constantes**

```
/******  
*                               Code MI-GI-CHEMIN                               *  
*                               Mouvement des Ions dans un Guide d'Ions          *  
*                               Contenant de l'Helium, des champs Electriques et *  
*                               Magnetiques et des Impuretes Neutralisantes      *  
*                               *                                                 *  
*****/  
  
#include <stdio.h>  
#include <stdlib.h>  
#include <time.h>  
#include <math.h>  
#include <string.h>  
#include <floatingpoint.h>  
  
typedef struct Particule  
{  
    double x,y,z; /*l'unite de longueur est le picometre*/  
    double Vx,Vy,Vz;  
    int Charge_ionique;  
    int flag_sortie,flag_contact_paro,flag_neutralisation;  
    double temps; /*l'unite de temps est 10^(-18)s*/  
    double distance_parcourue[10];  
} une_particule;  
  
typedef une_particule *des_particules;
```

```

typedef struct Chu_coefficients
{
    double A1,A2,A3,A4;
} chu_fits;

typedef struct couple_Z_A
{
    int Zcorrespondance;
    int Acorrespondance;
    char nom_fichier_noyau_Z[15];
} duo_correspondance_Z_A;

typedef struct couple_vitesse_epaisseur
{
    int vitesse_noyau_incident; /*valeur entiere en KeV/u*/
    double epaisseur_He_traverse; /*en mg/cm2*/
} duo_vitesse_Z_epaisseur_He;

#define PI 3.141592653589793
#define vitesse_lumiere 299.792458 /*en pm/10^(-18)s*/
#define MCcarre 931.49432 /*MeV*/
#define Charge_elementaire 1.60217733e-19 /*en C*/
#define Masse_nucleon 1.6605402e-27 /*en kg*/
#define Masse_electron 9.1093897e-31 /*en kg*/
#define densite_He_atm 1.66415e-4 /*en g/cm3/atm*/
#define Fraction_acceptable 1.0e-3
/* E_arret_par_A doit etre inferieure a 1.0e-3 */
#define E_arret_par_A 1.0e-4 /*en MeV/A*/
#define Valeur_memorisation_fichier_1 1
#define Valeur_memorisation_fichier_2 10000000
#define Valeur_memorisation_fichier_3 10000000
#define Valeur_memorisation_fichier_4 10000000
#define Valeur_memorisation_fichier_5 10000000
#define Valeur_memorisation_collision 10000000

```

## **F.2 Détermination de l'état de charge moyen, et de la dispersion en état de charge, des ions au moment de leur entrée dans le guide d'ions**

/\*fonction qui determine la fraction de charge moyenne a partir de la vitesse de fermi (elle-meme retournee)\*/

```

int calcul_q_moyen(double *V_fermi,int Z_cible,int Z_projectile,
double E_par_uma,double *fraction_q_moyen)
{
    FILE *fp;
    double vitesse_relative,vitesse_effective;

```

```

fp=fopen("Vfermi.h","rb");
if (fp==NULL)
{
    printf("Erreur d'ouverture du fichier 'Vfermi.h' !\n");
    return(1);
}
Z_cible--; /*Z de la cible devient Z-1*/
fseek(fp,Z_cible*sizeof(double),0);
fread(V_fermi,sizeof(double),1,fp);
fclose(fp);
Z_cible++; /*Z-1 de la cible est remis a Z*/
if (sqrt(E_par_uma*1000/24.854)>=(*V_fermi))
    vitesse_relative=sqrt(E_par_uma*1000/24.854)*(1.0+0.2*
    pow(*V_fermi,2.0)/(E_par_uma*1000/24.854));
else vitesse_relative=0.75*(*V_fermi)*(1.0+2.0/3.0*E_par_uma*1000/24.854/
    pow(*V_fermi,2.0)-1.0/15.0*pow(E_par_uma*1000/24.854,2.0)/pow(*V_fermi,4.0));
vitesse_effective=vitesse_relative/pow((double)Z_projectile,2.0/3.0);
if (vitesse_effective<0.13)
{
    printf("vitesse_effective < 0.13 : ");
    printf("choisir une vitesse d'entree plus elevee !\n");
    return(2);
}
(*fraction_q_moyen)=1.0-exp(0.803*pow(vitesse_effective,0.3)-1.3167*
    pow(vitesse_effective,0.6)-0.38157*vitesse_effective-0.008983*
    pow(vitesse_effective,2.0));

return(0);
}

```

/\* Determination de la Charge ionique a partir du modele de Ziegler-Biersack  
et de la dispersion en charge a partir du modele de Nikolaev et Dmitriev \*/

```

reponse='a';
while (reponse!='o' && reponse!='n')
{
    printf("Voulez-vous fixer vous-meme l'etat de charge moyen \n");
    printf("et la dispersion en etat de charge ? (o/n): ");
    fflush(stdin);
    scanf("%c",&reponse);
}
if (reponse=='o')
{
    printf("Donnez la valeur de l'etat de charge moyen : ");
    scanf("%lf",&charge_moyenne);
    printf("Donnez la largeur a mi-hauteur de la dispersion \n");
    printf("en etat de charge : ");
    scanf("%lf",&charge_largeur);
    sigma=charge_largeur/2.345;
    for (i=0;i<Nb_P;i++)
    {

```



```

    acceptation=0;
    do
    {
        r1=tirage_aleatoire();
        r2=tirage_aleatoire();
        resultat=exp(-pow(20.0*r2-10.0,2.0)/2.0);
        if (resultat>=r1) acceptation=1;
    }
    while (acceptation==0);
    charge_ecart[i]=-10.0*sigma+20.0*sigma*r2;
    (*des_ions+i)->Charge_ionique=charge_moyenne+charge_ecart[i];
    if ((charge_moyenne+charge_ecart[i]-((*des_ions+i)->Charge_ionique))>=0.5)
        (*des_ions+i)->Charge_ionique=((*des_ions+i)->Charge_ionique)+1;
    if (((*des_ions+i)->Charge_ionique)>Nb_Z)
        (*des_ions+i)->Charge_ionique=Nb_Z;
    if (((*des_ions+i)->Charge_ionique)<0)
        (*des_ions+i)->Charge_ionique=0;
    if (((*des_ions+i)->Charge_ionique)==0)
        (*des_ions+i)->flag_neutralisation=1;
    }
}
else
{
    printf("Quel est le Z du ralentisseur que vous avez utilise avant \n");
    printf("l'entree dans la cellule d'helium ? ");
    scanf("%d",&Z_ralentisseur);
    for (i=0;i<Nb_P;i++)
    {
        recherche_erreur=calcul_q_moyen(&vitesse_fermi,Z_ralentisseur,Nb_Z,
        E_par_A_straggle[i],&fraction_moyenne);
        if (recherche_erreur==1) return(1);
        if (recherche_erreur==2)
        {
            printf("Vitesse trop faible en considerant le straggling !\n");
            return(1);
        }
        charge_fixe[i]=fraction_moyenne*((double)Nb_Z);
        charge_largeur=0.5*sqrt(charge_fixe[i]*(1.0-pow(fraction_moyenne,
        1.0/0.6)));
        sigma=charge_largeur/2.345;
        acceptation=0;
        do
        {
            r1=tirage_aleatoire();
            r2=tirage_aleatoire();
            resultat=exp(-pow(20.0*r2-10.0,2.0)/2.0);
            if (resultat>=r1) acceptation=1;
        }
        while (acceptation==0);
        charge_ecart[i]=-10.0*sigma+20.0*sigma*r2;
    }
}

```

```

(*des_ions+i)->Charge_ionique=charge_fixe[i]+charge_ecart[i];
if ((charge_fixe[i]+charge_ecart[i]-((*des_ions+i)->Charge_ionique))>=0.5)
(*des_ions+i)->Charge_ionique=((*des_ions+i)->Charge_ionique)+1;
if (((*des_ions+i)->Charge_ionique)>Nb_Z)
(*des_ions+i)->Charge_ionique=Nb_Z;
if (((*des_ions+i)->Charge_ionique)<0)
(*des_ions+i)->Charge_ionique=0;
if (((*des_ions+i)->Charge_ionique)==0)
(*des_ions+i)->flag_neutralisation=1;
}
}

```

### **F.3 Détermination de la dispersion en énergie des ions au moment de leur entrée dans le guide d'ions**

```

/*determination de E_par_A_straggle a partir du modele semi-empirique 1991
de Yang et O'connor de l'universite de Newcastle en australie et de Wang de
l'universite de Pekin en Chine....en utilisant le facteur de charge effective,
gamma, calcule a partir du modele de Ziegler et Biersack*/
for (i=0;i<Nb_P;i++) E_par_A_straggle[i]=E_par_A;
reponse='a';
while (reponse!='o' && reponse!='n')
{
printf("Voulez-vous faire calculer le straggling en energie \n");
printf("en entree de la cellule de gaz ? (o/n): ");
fflush(stdin);
scanf("%c",&reponse);
}
if (reponse=='o')
{
printf("Quel est le Z du ralentisseur que vous avez utilise avant \n");
printf("l'entree dans la cellule d'helium ? ");
scanf("%d",&Z_ralentisseur);
printf("Donnez l'epaisseur du ralentisseur, en micrometre :");
scanf("%lf",&epaisseur_ralentisseur);
epaisseur_ralentisseur=epaisseur_ralentisseur*1.0e9;
/*l'epaisseur en micrometre est mis en fermi*/
printf("Donnez la densite du ralentisseur, en g/cm3 :");
scanf("%lf",&densite_ralentisseur);
printf("Donnez la masse molaire du ralentisseur, en g/mol :");
scanf("%lf",&massemolaire_ralentisseur);
N=densite_ralentisseur*6.0221367e23/massemolaire_ralentisseur;
N=N*1.0e-39; /*passage du nombre d'atomes/cm3 au nombre d'at./fm3*/
recherche_erreur=calcul_q_moyen(&vitesse_fermi,Z_ralentisseur,Nb_Z,E_par_A,
&fraction_moyenne);
if (recherche_erreur==1) return(1);
if (recherche_erreur==2) return(1);
gamma=fraction_moyenne+(1.0-fraction_moyenne)/(2.0*pow(vitesse_fermi,2.0))*
log(1.0+pow(2.0*vitesse_fermi*2.0*pow(1.0-fraction_moyenne,2.0/3.0)/

```

```

(pow((double)Nb_Z,1.0/3.0)*(1.0-(1.0-fraction_moyenne)/7.0),2.0));
fp=fopen("Chu_fitting.h","rb");
if (fp==NULL)
{
    printf("Erreur d'ouverture du fichier 'Chu_fitting.h' !\n");
    return(1);
}
Z_ralentisseur--; /*Z du ralentisseur devient Z-1*/
fseek(fp,Z_ralentisseur*sizeof(struct Chu_coefficients),0);
fread(&ralentisseur,sizeof(struct Chu_coefficients),1,fp);
fclose(fp);
Z_ralentisseur++; /*Z-1 du ralentisseur est remis a Z*/
energie_largeur=pow(gamma,2.0)/(1.0+(ralentisseur.A1)*pow(E_par_A,
ralentisseur.A2)+(ralentisseur.A3)*pow(E_par_A,ralentisseur.A4));
energie_largeur=energie_largeur+pow((double)Nb_Z,4.0/3.0)/
pow((double)Z_ralentisseur,1.0/3.0)*1.273e-2*0.3931*(1.0-
exp(-3.812*E_par_A/(pow((double)Nb_Z,3.0/2.0)*
pow((double)Z_ralentisseur,1.0/2.0))))/(pow(E_par_A/
(pow((double)Nb_Z,3.0/2.0)*pow((double)Z_ralentisseur,1.0/2.0))-3.458e-2,
2.0)+pow(0.3931*(1.0-exp(-3.812*E_par_A/(pow((double)Nb_Z,3.0/2.0)*
pow((double)Z_ralentisseur,1.0/2.0))))),2.0));
energie_largeur=energie_largeur*4.0*PI*pow((double)Nb_Z,2.0)*
((double)Z_ralentisseur)*pow(197.327053/137.0359895,2.0)*N*
epaisseur_ralentisseur;
energie_largeur=sqrt(energie_largeur)/((double)Nb_A);
sigma=energie_largeur/2.345;
for (i=0;i<Nb_P;i++)
{
    acceptation=0;
    do
    {
        r1=tirage_aleatoire();
        r2=tirage_aleatoire();
        resultat=exp(-pow(20.0*r2-10.0,2.0)/2.0);
        if (resultat>=r1) acceptation=1;
    }
    while (acceptation==0);
    delta_E_par_A=-10.0*sigma+20.0*sigma*r2;
    E_par_A_straggle[i]=E_par_A_straggle[i]+delta_E_par_A;
    if (E_par_A_straggle[i]<(3.8e-8/(double)Nb_A))
        E_par_A_straggle[i]=(3.8e-8/(double)Nb_A);
    }
}
else
{
    reponse='a';
    while (reponse!='o' && reponse!='n')
    {
        printf("Voulez-vous donner vous-meme le straggling en energie, \n");
        printf("mais attention, en MeV/A ? (o/n): ");
    }
}

```

```

    fflush(stdin);
    scanf("%c",&reponse);
}
if (reponse=='o')
{
    printf("Donnez la largeur a mi-hauteur du straggling \n");
    printf("en energie, en MeV/A : ");
    scanf("%lf",&energie_largeur);
    sigma=energie_largeur/2.345;
    for (i=0;i<Nb_P;i++)
    {
        acceptation=0;
        do
        {
            r1=tirage_aleatoire();
            r2=tirage_aleatoire();
            resultat=exp(-pow(20.0*r2-10.0,2.0)/2.0);
            if (resultat>=r1) acceptation=1;
        }
        while (acceptation==0);
        delta_E_par_A=-10.0*sigma+20.0*sigma*r2;
        E_par_A_straggle[i]=E_par_A_straggle[i]+delta_E_par_A;
        if (E_par_A_straggle[i]<(3.8e-8/(double)Nb_A))
            E_par_A_straggle[i]=(3.8e-8/(double)Nb_A);
    }
}
}

```

## **F.4 Définition des deux premières « géométries » du Code**

```

printf("PHASE DETERMINATION GEOMETRIE !\n");
do
{
    fflush(stdin);
    detection_erreur=0;
    printf("Quelle geometrie de guide d'ions et de champs souhaitez vous ?\n");
    printf("1-la geometrie cylindrique (avec cylindre creux) \n");
    printf("2-la geometrie speciale (avec formes prototype verre) \n");
    .....
    .....
    scanf("%c",&reponse);
    switch(reponse)
    {
        case '1':
        {
            type_geometrie=1;
            printf("Donnez le diametre du cylindre en mm:");
            scanf("%lf",&grand_diametre);
            grand_diametre=grand_diametre*1.0e9; /*passage du mm au picometre*/
            printf("Donnez la longueur de la cellule en mm:");

```

```

scanf("%lf",&longueur_cellule);
longueur_cellule=longueur_cellule*1.0e9; /*passage du mm au picometre*/
printf("Donnez l'intensite du champ electrique impose en V/m:");
scanf("%lf",&E);
printf("Donnez l'intensite du champ magnetique impose en Tesla:");
scanf("%lf",&B);
}
break;
case '2':
{
type_geometrie=2;
printf("Donnez le diametre du cylindre en entree en mm:");
scanf("%lf",&grand_diametre);
grand_diametre=grand_diametre*1.0e9; /*passage du mm au picometre*/
printf("Donnez le diametre du trou de sortie en mm:");
scanf("%lf",&petit_diametre);
petit_diametre=petit_diametre*1.0e9; /*passage du mm au picometre*/
printf("Donnez la longueur de la cellule en mm:");
scanf("%lf",&longueur_cellule);
longueur_cellule=longueur_cellule*1.0e9; /*passage du mm au picometre*/
printf("Donnez la longueur de convergence du champ electrique en mm:");
scanf("%lf",&longueur_convergence);
longueur_convergence=longueur_convergence*1.0e9;
/*passage du mm au picometre*/
printf("Donnez l'intensite du champ electrique impose, au niveau ");
printf("du trou de sortie, en V/m:");
scanf("%lf",&E);
printf("Donnez l'intensite du champ magnetique impose en Tesla:");
scanf("%lf",&B);
}
break;
.....
.....
default:
{
printf("solution non disponible !\n");
detection_erreur=1;
}
break;
}
}
while (detection_erreur==1);

```

## **F.5 Fonctions spécifiques à la première « géométrie » du Code**

/\*fonction qui determine, a partir de la position spatiale de la particule,  
l'intensite et la direction du champ electrique en ce point, dans le cas d'une  
cellule cylindrique\*/

```
void champ_electrique_cellule_cylindrique(double I_champ_electrique,
```

```
double *Ix_champ_electrique,double *Iy_champ_electrique,
double *Iz_champ_electrique)
{
  (*Ix_champ_electrique)=0;
  (*Iy_champ_electrique)=0;
  (*Iz_champ_electrique)=I_champ_electrique;
}
```

/\*fonction qui determine, a partir de la position spatiale de la particule,  
l'intensite et la direction du champ magnetique en ce point, dans le cas d'une  
cellule cylindrique\*/

```
void champ_magnetique_cellule_cylindrique(des_particules des_ions,int part_n,
double G_diametre,double L_cellule,double I_champ_magnetique,
double *Ix_champ_magnetique,double *Iy_champ_magnetique,
double *Iz_champ_magnetique)
{
  (*Ix_champ_magnetique)=0;
  (*Iy_champ_magnetique)=0;
  (*Iz_champ_magnetique)=I_champ_magnetique;
}
```

/\*Fonction qui determine si une particule touche les parois de la cellule\*/  
/\*ou si elle sort de la cellule, dans le cas d'une cellule cylindrique\*/

```
void contact_parois_cylindriques_et_sortie(des_particules *des_ions,int part_n,
double G_diametre,double L_cellule)
{
  double D_axe;

  D_axe=sqrt(pow((*des_ions+part_n)->x,2.0)+pow((*des_ions+part_n)->y,2.0));

  /*cas ou la particule est perdue sur les parois*/
  if (((*des_ions+part_n)->z)>=0.0 && ((*des_ions+part_n)->z)<L_cellule)
    if (D_axe>=(G_diametre/2.0)) (*des_ions+part_n)->flag_contact_paro=1;

  /*cas ou la particule sort*/
  if (((*des_ions+part_n)->z)>=L_cellule)
  {
    if (D_axe<=(G_diametre/2.0)) (*des_ions+part_n)->flag_sortie=1;
    else (*des_ions+part_n)->flag_contact_paro=1;
  }
}
```

## **F.6 Détermination du parcours des ions**

/\*Fonction qui determine le parcours des ions energetiques dans la cellule\*/

```

int parcours_tables(des_particules des_ions,int Nb_P,int Nb_Z,int Nb_A,
double P_He,double **Range_Theorique)
{
FILE *fp;
duo_correspondance_Z_A ZetA;
duo_vitesse_Z_epaisseur_He ZetHe;
int i,decouvert,boucle;
double norme_carre_vitesse;
double E_en_MeV_par_A;
int E_en_KeV_par_A;
double parcours_noyau_Z[Nb_P];

fp=fopen("CorrespondanceR_Z_A.h","rb");
if (fp==NULL)
{
printf("Erreur d'ouverture du fichier 'CorrespondanceR_Z_A.h' !\n");
return(1);
}
Nb_Z--; /*Le Z du projectile devient Z-1 !*/
fseek(fp,Nb_Z*sizeof(struct couple_Z_A),0);
fread(&ZetA,sizeof(struct couple_Z_A),1,fp);
fclose(fp);
Nb_Z++; /*On remet le Z du projectile de Z-1 a Z !*/
fp=fopen(ZetA.nom_fichier_noyau_Z,"rb");
if (fp==NULL)
{
printf("Erreur d'ouverture du fichier %s !\n",ZetA.nom_fichier_noyau_Z);
return(1);
}

for (boucle=0;boucle<Nb_P;boucle++)
if (((des_ions+boucle)->flag_contact_paro==0 &&
(des_ions+boucle)->flag_neutralisation==0 &&
(des_ions+boucle)->flag_sortie==0)
{
norme_carre_vitesse=pow((des_ions+boucle)->Vx,2.0)+
pow((des_ions+boucle)->Vy,2.0)+pow((des_ions+boucle)->Vz,2.0);
E_en_MeV_par_A=0.5*MCcarre*norme_carre_vitesse/pow(vitesse_lumiere,2.0);
E_en_KeV_par_A=E_en_MeV_par_A*1000;
if (E_en_MeV_par_A*1000-E_en_KeV_par_A>0.5)
E_en_KeV_par_A=E_en_KeV_par_A+1;
decouvert=0;
i=500;
fseek(fp,0*sizeof(struct couple_vitesse_epaisseur),0);
while (decouvert==0 && i<5001)
{
fread(&ZetHe,sizeof(struct couple_vitesse_epaisseur),1,fp);
if (ZetHe.vitesse_noyau_incident==E_en_KeV_par_A) decouvert=1;
i++;
}
}
}

```

```

if (decouvert==0)
{
printf("L'energie %d en KeV/A de l'ion %d est hors de 0.5-5 MeV/A !\n",
E_en_KeV_par_A,boucle+1);
return(1);
}
parcours_noyau_Z[boucle]=ZetHe.epaisseur_He_traverse*(double)Nb_A/
(double)(ZetA.Acorrespondance); /*en mg/cm2*/
>(*Range_Theorique+boucle)=parcours_noyau_Z[boucle]/(densite_He_atm*
1000.0*P_He)*1e10;
/* Range_Theorique est exprime en Picometre */
}
fclose(fp);

return(0);
}

```

## **F.7 Détermination du « pas de temps » pendant le parcours**

/\*Fonction qui determine le pas\_de\_temps, pendant le debut du parcours, d'une particule en choisissant la borne inferieure de tous les pas\_de\_temps maximums choississables par rapport a l'approximation au premier ordre du changement de position\*/

```

double calcul_dT_debut_parcours(des_particules des_ions,int part_n,
double Ix_champ_electrique,double Iy_champ_electrique,
double Iz_champ_electrique,double Ix_champ_magnetique,
double Iy_champ_magnetique,double Iz_champ_magnetique,
int Nb_Z,int Nb_A,double P_He,long int *Nb_Pas_de_Temps,double *S_E,double *S_N,
double *Range_Effectue,double *Range_Theorique)
{
double Borne_inf,dT_max;
double intermediaire;
double X0,Y0,Z0;
double Vx0,Vy0,Vz0;
double Ax0,Ay0,Az0;
double Masse_He;
double densite_ralentisseur;
double N_atomes;
double S_n_reduit,S_n;
double S_e;
double E_0_MeV_par_A,E_0_KeV_par_A,E_0_KeV,epsilon;
double A_1,A_2,A_3,A_4,A_5,A_6,A_7,A_8,A_9,A_10,A_11,A_12;
int cas_formule;
double beta_carre;
double vitesse_fermi,fraction_moyenne,gamma;
int recherche_erreur,Z_ralentisseur;
char reponse;

/*incrementation du nombre de Pas de Temps*/

```



```

(*Nb_Pas_de_Temps)=(Nb_Pas_de_Temps)+1;
/*calcul du nombre d'atomes d'hélium par cm3*/
Masse_He=4.002602; /*en g/mol*/
densite_ralentisseur=densite_He_atm*P_He; /*en g/cm3*/
N_atomes=densite_ralentisseur*6.0221367e23/Masse_He;
/*sauvegarde des coordonnees et vitesses initiales*/
X0=(des_ions+part_n)->x;
Y0=(des_ions+part_n)->y;
Z0=(des_ions+part_n)->z;
Vx0=(des_ions+part_n)->Vx;
Vy0=(des_ions+part_n)->Vy;
Vz0=(des_ions+part_n)->Vz;
/*determination de l'energie initiale*/
E_0_MeV_par_A=0.5*MCcarre*(pow(Vx0,2.0)+pow(Vy0,2.0)+pow(Vz0,2.0))/
pow(vitesse_lumiere,2.0);
E_0_KeV_par_A=E_0_MeV_par_A*1000;
E_0_KeV=E_0_KeV_par_A*Nb_A;
/*Coefficients d'arret de l'hydrogene dans l'hélium*/
A_1=1.229;
A_2=1.397;
A_3=484.5;
A_4=5873;
A_5=0.05225;
A_6=0.00102;
A_7=2.451e4;
A_8=-2.158;
A_9=0.8278;
A_10=-0.1172;
A_11=0.007259;
A_12=-0.000166;
/*determination de S_e*/
cas_formule=0;
if (E_0_KeV_par_A>=1.0 && E_0_KeV_par_A<=10.0) cas_formule=1;
if (E_0_KeV_par_A>10.0 && E_0_KeV_par_A<1000.0) cas_formule=2;
if (E_0_KeV_par_A>=1.0e3 && E_0_KeV_par_A<=1.0e5) cas_formule=3;
if (cas_formule==1) S_e=A_1*sqrt(E_0_KeV_par_A);
if (cas_formule==2) S_e=A_2*pow(E_0_KeV_par_A,0.45)*A_3/E_0_KeV_par_A*
log(1.0+A_4/E_0_KeV_par_A+A_5*E_0_KeV_par_A)/(A_2*pow(E_0_KeV_par_A,0.45)+
A_3/E_0_KeV_par_A*log(1.0+A_4/E_0_KeV_par_A+A_5*E_0_KeV_par_A));
if (cas_formule==3)
{
    beta_carre=2.0*E_0_MeV_par_A/MCcarre;
    S_e=(A_6/beta_carre)*(log(A_7*beta_carre/(1.0-beta_carre))-beta_carre-A_8-
A_9*log(E_0_KeV_par_A)-A_10*pow(log(E_0_KeV_par_A),2.0)-A_11*
pow(log(E_0_KeV_par_A),3.0)-A_12*pow(log(E_0_KeV_par_A),4.0));
}
/*S_e est mis en eV/cm (1.0e-15) puis en MeV/cm et enfin en MeV/pm*/
S_e=S_e*N_atomes*1.0e-15*1.0e-6*1.0e-10;
Z_ralentisseur=2;

```

```

recherche_erreur=calcul_q_moyen(&vitesse_fermi,Z_ralentisseur,Nb_Z,
E_0_MeV_par_A,&fraction_moyenne);
if (recherche_erreur==1) return(-1);
if (recherche_erreur==2)
{
printf("Erreur dans la fonction 'calcul_dT_debut_parcours' !\n");
return(-1);
}
gamma=fraction_moyenne+(1.0-fraction_moyenne)/(2.0*pow(vitesse_fermi,2.0))*
log(1.0+pow(2.0*vitesse_fermi*2.0*pow(1.0-fraction_moyenne,2.0/3.0)/
(pow((double)Nb_Z,1.0/3.0)*(1.0-(1.0-fraction_moyenne)/7.0)),2.0));
S_e=S_e*pow(gamma*(double)Nb_Z,2.0);
(*S_E)=S_e;
/*determination de S_n*/
epsilon=32.53*4.0/((4.0+(double)Nb_A)*(double)Z_ralentisseur*(double)Nb_Z*
(pow((double)Z_ralentisseur,0.23)+pow((double)Nb_Z,0.23)))*E_0_KeV;
if (epsilon>30.0) S_n_reduit=log(epsilon)/(2.0*epsilon);
if (epsilon<=30.0) S_n_reduit=log(1.0+1.1383*epsilon)/(2.0*(epsilon+0.01321*
pow(epsilon,0.21226)+0.19593*sqrt(epsilon)));
S_n=S_n_reduit*8.462e-15*Z_ralentisseur*Nb_Z*Nb_A/((4.0+(double)Nb_A)*
(pow((double)Z_ralentisseur,0.23)+pow((double)Nb_Z,0.23)));
/*S_n est mis en eV/cm puis en MeV/cm et enfin en MeV/pm*/
S_n=S_n*N_atomes*1.0e-6*1.0e-10;
(*S_N)=S_n;
/*printf("Epsilon1:%g\tS_e:%g\tS_n:%g\n",epsilon,S_e,S_n);*/

Borne_inf=1.0e24;

Ax0=(Charge_elementaire*((des_ions+part_n)->Charge_ionique)/(Nb_A*
Masse_nucleon+Masse_electron*(Nb_Z-(des_ions+part_n)->Charge_ionique))*
(Ix_champ_electrique*1.0e-24+Iz_champ_magnetique*1.0e-18*Vy0-
Iy_champ_magnetique*1.0e-18*Vz0))-pow(vitesse_lumiere,2.0)*(S_e+S_n)*
Vx0/(sqrt(pow(Vx0,2.0)+pow(Vy0,2.0)+pow(Vz0,2.0)))*(double)Nb_A*MCcarre);
Ay0=(Charge_elementaire*((des_ions+part_n)->Charge_ionique)/(Nb_A*
Masse_nucleon+Masse_electron*(Nb_Z-(des_ions+part_n)->Charge_ionique))*
(Iy_champ_electrique*1.0e-24+Ix_champ_magnetique*1.0e-18*Vz0-
Iz_champ_magnetique*1.0e-18*Vx0))-pow(vitesse_lumiere,2.0)*(S_e+S_n)*
Vy0/(sqrt(pow(Vx0,2.0)+pow(Vy0,2.0)+pow(Vz0,2.0)))*(double)Nb_A*MCcarre);
Az0=(Charge_elementaire*((des_ions+part_n)->Charge_ionique)/(Nb_A*
Masse_nucleon+Masse_electron*(Nb_Z-(des_ions+part_n)->Charge_ionique))*
(Iz_champ_electrique*1.0e-24+Iy_champ_magnetique*1.0e-18*Vx0-
Ix_champ_magnetique*1.0e-18*Vy0))-pow(vitesse_lumiere,2.0)*(S_e+S_n)*
Vz0/(sqrt(pow(Vx0,2.0)+pow(Vy0,2.0)+pow(Vz0,2.0)))*(double)Nb_A*MCcarre);
/*printf("Ax0:%g\tAy0:%g\tAz0:%g\n",Ax0,Ay0,Az0);*/

/*printf("%d\n",(des_ions+part_n)->Charge_ionique);*/
/*printf("%lf\n",Iz_champ_magnetique);*/

/*determination du pas_de_temps lie a l'approximation du premier ordre*/
if (Ax0!=0)

```

```

{
    intermediaire=Vx0/Ax0;
    if (intermediaire<0) intermediaire=-intermediaire;
    dT_max=intermediaire*Fraction_acceptable;
    /*printf("dT_max1:%g\t",dT_max);*/
    if (dT_max<Borne_inf) Borne_inf=dT_max;
}
if (Ay0!=0)
{
    intermediaire=Vy0/Ay0;
    if (intermediaire<0) intermediaire=-intermediaire;
    dT_max=intermediaire*Fraction_acceptable;
    /*printf("dT_max2:%g\t",dT_max);*/
    if (dT_max<Borne_inf) Borne_inf=dT_max;
}
if (Az0!=0)
{
    intermediaire=Vz0/Az0;
    if (intermediaire<0) intermediaire=-intermediaire;
    dT_max=intermediaire*Fraction_acceptable;
    /*printf("dT_max3:%g\n",dT_max);*/
    if (dT_max<Borne_inf) Borne_inf=dT_max;
}
dT_max=(Range_Theorique[part_n]-Range_Effectue[part_n])/sqrt(pow(Vx0,2.0)+
pow(Vy0,2.0)+pow(Vz0,2.0));
if (dT_max<Borne_inf) Borne_inf=dT_max;

if (Borne_inf<1.0) Borne_inf=1.0;

/*printf("Borne_inf:%g\n",Borne_inf);
fflush(stdin);
scanf("%c",&reponse);*/

return(Borne_inf);
}

```

## **F.8 Détermination du « pas de temps » pendant la phase séquentielle**

/\*Fonction qui determine le pas\_de\_temps d'une particule en choisissant la borne inferieure de tous les pas\_de\_temps maximums choisissables par rapport a la modification de la distance\_parcourue et de l'approximation au premier ordre du changement de position\*/

```

double calcul_prochain_delta_T(des_particules des_ions,int part_n,
double Ix_champ_electrique,double Iy_champ_electrique,
double Iz_champ_electrique,double Ix_champ_magnetique,
double Iy_champ_magnetique,double Iz_champ_magnetique,
int Nb_Z,int Nb_A,double P_He,long int *Nb_Pas_de_Temps,

```

```

double *SigmaCollision,int Nb_I,double *Concentration_I,int *Cas_Coll)
{
    double Borne_inf,dT_max;
    double intermediaire;
    double X0,Y0,Z0;
    double Vx0,Vy0,Vz0;
    double Ax0,Ay0,Az0;
    double Masse_He,N_He;
    double densite_ralentisseur;
    double libre_parcours_moyen[10];
    int boucle;

    /*incrementation du nombre de Pas de Temps*/
    (*Nb_Pas_de_Temps)=(*Nb_Pas_de_Temps)+1;
    /*calcul du libre parcours moyen lie a la collision*/
    Masse_He=4.002602; /*en g/mol*/
    densite_ralentisseur=densite_He_atm*P_He; /*en g/cm3*/
    N_He=densite_ralentisseur*6.0221367e23/Masse_He;
    /*conversion en nombre d'atomes par pm^3*/
    N_He=N_He*1.0e-30;
    libre_parcours_moyen[0]=1.0/(N_He*SigmaCollision[0]);
    for (boucle=1;boucle<=Nb_I;boucle++)
    {
        libre_parcours_moyen[boucle]=1.0e6/(N_He*Concentration_I[boucle]*
        SigmaCollision[boucle]);
    }
    /*sauvegarde des coordonnees de position et de vitesse*/
    X0=(des_ions+part_n)->x;
    Y0=(des_ions+part_n)->y;
    Z0=(des_ions+part_n)->z;
    Vx0=(des_ions+part_n)->Vx;
    Vy0=(des_ions+part_n)->Vy;
    Vz0=(des_ions+part_n)->Vz;
    /*determination de Ax0, Ay0, Az0*/
    Ax0=Charge_elementaire*((des_ions+part_n)->Charge_ionique)/(Nb_A*
    Masse_nucleon+Masse_electron*(Nb_Z-(des_ions+part_n)->Charge_ionique))*
    (Ix_champ_electrique*1.0e-24+Iz_champ_magnetique*1.0e-18*Vy0-
    Iy_champ_magnetique*1.0e-18*Vz0);
    Ay0=Charge_elementaire*((des_ions+part_n)->Charge_ionique)/(Nb_A*
    Masse_nucleon+Masse_electron*(Nb_Z-(des_ions+part_n)->Charge_ionique))*
    (Iy_champ_electrique*1.0e-24+Ix_champ_magnetique*1.0e-18*Vz0-
    Iz_champ_magnetique*1.0e-18*Vx0);
    Az0=Charge_elementaire*((des_ions+part_n)->Charge_ionique)/(Nb_A*
    Masse_nucleon+Masse_electron*(Nb_Z-(des_ions+part_n)->Charge_ionique))*
    (Iz_champ_electrique*1.0e-24+Iy_champ_magnetique*1.0e-18*Vx0-
    Ix_champ_magnetique*1.0e-18*Vy0);

    Borne_inf=1.0e24;

    /*determination du pas_de_temps lie a l'approximation du premier ordre*/

```

```

if (Ax0!=0)
{
    intermediaire=Vx0/Ax0;
    if (intermediaire<0) intermediaire=-intermediaire;
    dT_max=intermediaire*Fraction_acceptable;
    if (dT_max<Borne_inf) Borne_inf=dT_max;
}
if (Ay0!=0)
{
    intermediaire=Vy0/Ay0;
    if (intermediaire<0) intermediaire=-intermediaire;
    dT_max=intermediaire*Fraction_acceptable;
    if (dT_max<Borne_inf) Borne_inf=dT_max;
}
if (Az0!=0)
{
    intermediaire=Vz0/Az0;
    if (intermediaire<0) intermediaire=-intermediaire;
    dT_max=intermediaire*Fraction_acceptable;
    if (dT_max<Borne_inf) Borne_inf=dT_max;
}
/*determination du pas_de_temps lie a la distance parcourue*/
(*Cas_Coll)=-1;
for (boucle=0;boucle<=Nb_I;boucle++)
{
    dT_max=(libre_parcours_moyen[boucle]-
    (des_ions+part_n)->distance_parcourue[boucle])/sqrt(pow(Vx0,2.0)+
    pow(Vy0,2.0)+pow(Vz0,2.0));
    if (dT_max<Borne_inf)
    {
        (*Cas_Coll)=boucle;
        Borne_inf=dT_max;
    }
}

if (Borne_inf<1.0) Borne_inf=1.0;

return(Borne_inf);
}

```

## **F.9 Détermination des caractéristiques de la diffusion**

```

/*fonction qui retourne la derivee de sigma en x*/

double derivee_sigma_reduit(double y)
{
    double g_y;
    double A,B,C;

    A=1+1.1383*y;

```

```

B=y+0.01321*pow(y,0.21226)+0.19593*pow(y,0.5);
C=1.0+0.01321*0.21226*pow(y,0.21226-1.0)+0.19593/(2.0*pow(y,0.5));

g_y=1/pow(y,2.0)*(log(A)/(2.0*B)+1.1383*y/(2.0*A*B)-y*log(A)*C/(2.0*B*B));

return(g_y);
}

```

/\*Fonction de determination de Theta\_0 en fonction de epsilon\*/

```

int stock_theta_0(double epsilon,double SigmaT,double Z_Coll,int Nb_Z,
double *theta_0)
{
double theta_cm;
double integrale;
double Dsigma_Dx,x;
double Bohr_radius;

Bohr_radius=52.9177249; /*en pm*/
integrale=0;
theta_cm=PI+1.0e-3/2.0;
do
{
theta_cm=theta_cm-1.0e-3;
x=epsilon*sin(theta_cm/2.0);
Dsigma_Dx=PI*pow(0.8854*Bohr_radius/(pow(Z_Coll,0.23)+pow((double)Nb_Z,
0.23)),2.0)*derivee_sigma_reduit(x);
integrale=integrale+Dsigma_Dx*(epsilon*sin((theta_cm+1.0e-3/2.0)/2.0)-
epsilon*sin((theta_cm-1.0e-3/2.0)/2.0));
}
while (integrale<SigmaT);
theta_cm=theta_cm-1.0e-3/2.0;
(*theta_0)=theta_cm;

return(0);
}

```

/\*fonction qui determine les proprietes de la collision\*/

```

int collision_particule(des_particules *des_ions,int part_n,
double P_He,int Nb_Z,int Nb_A,long int *Nb_C,double *SigmaInelastique,

```

```

double *SigmaCollision,int Cas_Coll,int Nb_N_S,int Wu_Huber,
double *Nb_Nucleons,double *Nb_Protons,long int Nb_Pas_de_Temps)
{
double X0,Y0,R0,Z0,T0,Vx0,Vy0,Vz0;
double E_en_MeV_par_A_0,E_en_MeV_par_A;
double E_0,E;
double norme_carre_vitesse_0,norme_carre_vitesse;
double epsilon;
double Bohr_radius,Fine_structure_constant,Conversion_constant;
double sigma_T;
double theta_cm;
double Theta_0;
double Xt;
int acceptionation;
double r,r1,r2,resultat;
double Theta_Labo,Phi_Labo;
double Theta_Initial,Phi_Initial;
FILE *fnoyau;
int errare;
char nom_fichier[40];
char nom_chiffre[11];
double Zcollision;
char reponse;
double etheta1,etheta2,etheta3,ephi1,ephi2,ephi3,er1,er2,er3;
double Carre_ecarts;

if (Cas_Coll==0)
{
SigmaInelastique[Cas_Coll]=0;
if (Wu_Huber==1)
{
/*les sections efficaces sont mises en pm^2, d'ou *1.0e20*/
if (Nb_Z==3) SigmaInelastique[Cas_Coll]=1.99e-18*1.0e20; /*2.09 keV*/
/*Donnee pas trouee pour Be*/
if (Nb_Z==5) SigmaInelastique[Cas_Coll]=1.07e-16*1.0e20; /*446 keV*/
if (Nb_Z==6)
{
if ((*des_ions+part_n)->Charge_ionique==2)
SigmaInelastique[Cas_Coll]=7.09e-16*1.0e20; /*1.00 keV*/
/*Donnee pas trouee pour transition 1+/neutre*/
}
}
if (Nb_Z==7) SigmaInelastique[Cas_Coll]=6.01e-17*1.0e20; /*5.00 keV*/
if (Nb_Z==8) SigmaInelastique[Cas_Coll]=1.66e-16*1.0e20; /*50.0 keV*/
/*Donnee pas trouee pour F*/
if (Nb_Z==10) SigmaInelastique[Cas_Coll]=3.00e-21*1.0e20; /*83.9 eV*/
if (Nb_Z==11) SigmaInelastique[Cas_Coll]=1.10e-18*1.0e20; /*3.05 keV*/
/* A completer avec les donnees de Wu !!!!!!! */
}
}
}

```

```

/*Determination si collision elastique ou inelastique par
   Methode de Monte-Carlo*/
if (Cas_Coll!=0 || Wu_Huber==1)
{
  r=tirage_aleatoire();
  if (r<=(SigmaInelastique[Cas_Coll]/SigmaCollision[Cas_Coll]))
  {
    (*des_ions+part_n)->Charge_ionique=(*des_ions+part_n)->Charge_ionique-1;
    if ((*des_ions+part_n)->Charge_ionique==0)
      (*des_ions+part_n)->flag_neutralisation=1;
  }
}

if ((*des_ions+part_n)->flag_neutralisation==0)
{
  (*des_ions+part_n)->distance_parcourue[Cas_Coll]=0;
  (*Nb_C)=(*Nb_C)+1;

  /*sauvegarde de donnees du parcours en vue d'une exploitation ulterieure*/
  X0=(*des_ions+part_n)->x;
  Y0=(*des_ions+part_n)->y;
  Z0=(*des_ions+part_n)->z;
  R0=sqrt(pow(X0,2.0)+pow(Y0,2.0));
  T0=(*des_ions+part_n)->temps;
  Vx0=(*des_ions+part_n)->Vx;
  Vy0=(*des_ions+part_n)->Vy;
  Vz0=(*des_ions+part_n)->Vz;
  norme_carre_vitesse_0=pow(Vx0,2.0)+pow(Vy0,2.0)+pow(Vz0,2.0);
  E_en_MeV_par_A_0=0.5*MCcarre*norme_carre_vitesse_0/pow(vitesse_lumiere,2.0);
  E_0=E_en_MeV_par_A_0*Nb_A*1000; /*on passe E_0 du MeV au KeV*/
  if (part_n<Nb_N_S)
  {
    if ((*Nb_C)==Valeur_memorisation_collision)
    {
      (*Nb_C)=0;
      if (Nb_Pas_de_Temps!=0)
      {
        strcpy(nom_fichier,"parcours_noyau");
        gcvt((double)part_n,10,nom_chiffre);
        strcat(nom_fichier,nom_chiffre);
        strcat(nom_fichier,".data");
        fnoyau=fopen(nom_fichier,"a");
        if (fnoyau==NULL)
        {
          printf("Erreur fnoyau dans ");
          printf("collision_particule !\n");
          return(1);
        }
        fprintf(fnoyau,"%g\t%g\t%g\t%g\t%g\t%g\n",X0,Y0,Z0,R0,T0,E_0);
        fclose(fnoyau);
      }
    }
  }
}

```



```

    }
  }
}

/*determination de l'energie reduite: epsilon*/
Bohr_radius=0.529177249e-8; /*en cm*/
Fine_structure_constant=1/137.0359895;
Conversion_constant=197.327053*1000; /*en KeV.fm*/
epsilon=Bohr_radius*1.0e13*0.8854/(Conversion_constant*
Fine_structure_constant)*Nb_Nucleons[Cas_Coll]/((Nb_Nucleons[Cas_Coll]+
(double)Nb_A)*Nb_Protons[Cas_Coll]*(double)Nb_Z*
(pow(Nb_Protons[Cas_Coll],0.23)+pow((double)Nb_Z,0.23)))*E_0;
if (epsilon>30)
{
  printf("L'energie %g en MeV/A de l'ion %d a depasse l'energie reduite \n",
  E_en_MeV_par_A_0,part_n+1);
  printf("limite de 30 !\n");
  return(1);
}
/*printf("%g\n",epsilon);*/

/*determination directe de Theta_0*/
/*printf("Calcul de theta0\n");*/
sigma_T=SigmaCollision[Cas_Coll];
Zcollision=Nb_Protons[Cas_Coll];
errare=stock_theta_0(epsilon,sigma_T,Zcollision,Nb_Z,&Theta_0);
if (errare==1) return(1);
/*printf("%g\n",Theta_0);*/

/*tirage aleatoire de theta_cm*/
acceptation=0;
do
{
  r1=tirage_aleatoire();
  r2=tirage_aleatoire();
  Xt=epsilon*sin(Theta_0/2.0)+(epsilon-epsilon*sin(Theta_0/2.0))*r2;
  resultat=derivee_sigma_reduit(Xt)/derivee_sigma_reduit(epsilon*
sin(Theta_0/2.0));
  if (resultat>=r1) acceptation=1;
}
while (acceptation==0);
theta_cm=2.0*asin(Xt/epsilon);
/*printf("%g\n",theta_cm);*/

/*passage au referentiel du Labo*/
Theta_Labo=atan(sin(theta_cm)/(cos(theta_cm)+(double)Nb_A/
Nb_Nucleons[Cas_Coll]));
/*printf("%g\n",Theta_Labo);*/

/*determination de la nouvelle energie*/

```

```

E=E_0-4.0*(double)Nb_A*Nb_Nucleons[Cas_Coll]/pow(Nb_Nucleons[Cas_Coll]+
(double)Nb_A,2.0)*pow(sin(theta_cm/2.0),2.0)*E_0;
E_en_MeV_par_A=E/(1000.0*(double)Nb_A);
/*printf("%g\n",E);*/
/*printf("nb_pas_de_temps=%ld\n",Nb_Pas_de_Temps);*/

r=tirage_aleatoire();
Phi_Labo=r*2.0*PI;
/*printf("%g\n",Phi_Labo);*/

/*determination des nouvelles coordonnees de vitesse*/
norme_carre_vitesse=pow(vitesse_lumiere,2.0)*2.0*E_en_MeV_par_A/MCcarre;
Carre_ecarts=pow(Vy0-Vz0,2.0)+pow(Vz0-Vx0,2.0)+pow(Vx0-Vy0,2.0);
etheta1=(Vy0-Vz0)/sqrt(Carre_ecarts);
etheta2=(Vz0-Vx0)/sqrt(Carre_ecarts);
etheta3=(Vx0-Vy0)/sqrt(Carre_ecarts);
ephi1=(Vx0*Vy0+Vx0*Vz0-pow(Vy0,2.0)-pow(Vz0,2.0))/sqrt(Carre_ecarts*
norme_carre_vitesse_0);
ephi2=(Vy0*Vx0+Vy0*Vz0-pow(Vx0,2.0)-pow(Vz0,2.0))/sqrt(Carre_ecarts*
norme_carre_vitesse_0);
ephi3=(Vz0*Vx0+Vz0*Vy0-pow(Vx0,2.0)-pow(Vy0,2.0))/sqrt(Carre_ecarts*
norme_carre_vitesse_0);
er1=Vx0/sqrt(norme_carre_vitesse_0);
er2=Vy0/sqrt(norme_carre_vitesse_0);
er3=Vz0/sqrt(norme_carre_vitesse_0);

(*des_ions+part_n)->Vx=sqrt(norme_carre_vitesse)*sin(Theta_Labo)*
cos(Phi_Labo)*etheta1+sqrt(norme_carre_vitesse)*sin(Theta_Labo)*
sin(Phi_Labo)*ephi1+sqrt(norme_carre_vitesse)*cos(Theta_Labo)*er1;

(*des_ions+part_n)->Vy=sqrt(norme_carre_vitesse)*sin(Theta_Labo)*
cos(Phi_Labo)*etheta2+sqrt(norme_carre_vitesse)*sin(Theta_Labo)*
sin(Phi_Labo)*ephi2+sqrt(norme_carre_vitesse)*cos(Theta_Labo)*er2;

(*des_ions+part_n)->Vz=sqrt(norme_carre_vitesse)*sin(Theta_Labo)*
cos(Phi_Labo)*etheta3+sqrt(norme_carre_vitesse)*sin(Theta_Labo)*
sin(Phi_Labo)*ephi3+sqrt(norme_carre_vitesse)*cos(Theta_Labo)*er3;
}

return(0);
}

```





---

## RESUME

Cette thèse s'inscrit dans le cadre de la R&D pour la production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL au GANIL à Caen. Ce travail de thèse a porté sur plusieurs techniques différentes basées sur la méthode ISOL.

La première est la production de faisceaux d'ions radioactifs à partir d'un ensemble cible-source de SPIRAL (cible + source ECR). Les taux de production des faisceaux de néon radioactif ont été déterminés sur le banc de tests SIRa et les prévisions pour SPIRAL ont été établies. La faisabilité de la production de faisceaux d'éléments radioactifs condensables à partir d'un tel ensemble cible-source, en utilisant un transport sous une forme moléculaire volatile entre la cible et la source, a été démontré expérimentalement en produisant des faisceaux d'oxygène radioactif via la molécule CO.

La deuxième technique est la production de faisceaux d'alcalins radioactifs à partir de l'ensemble cible-source MONILITHE (cible + source à cavité chaude). Les efficacités de production des faisceaux de lithium et de sodium radioactifs ont été déterminées. Une nouvelle méthodologie, la « méthode globale », a été développée dans le cadre de cette thèse, afin de déduire les propriétés de diffusion, d'effusion et d'ionisation de ces deux éléments à partir de cet ensemble. Elle a montré que l'évolution des propriétés de diffusion entre les différents alcalins a un comportement similaire à celle entre les différents gaz rares.

La troisième est la technique IGISOL (cible + guide d'ions). Le code MI-GI-CHEMIN a été conçu afin de reproduire le mouvement des ions dans un guide d'ions, rempli d'hélium et d'une concentration donnée d'impuretés, incluant des champs électriques et magnétiques. Un premier prototype IGISOL est en cours de réalisation au GANIL.

---

### *Contribution to the study of radioactive ion beam production by the ISOL method*

---

## ABSTRACT

This thesis is related to the R&D program for the production of radioactive ion beams by the ISOL method at GANIL in Caen. This work concerns several different techniques based on the ISOL method.

The first one is the production of radioactive ion beams with a SPIRAL target-source system (target + ECR source). The production rates of radioactive neon beams were determined on the SIRa test bench and previsions for SPIRAL were established. The feasibility of the production of radioactive condensable element beams with such target-source system, with using a transport under a volatile molecular form between the target and the source, was experimentally proven by the production of radioactive oxygen beams via the CO molecule.

The second technique is the production of radioactive alkaline beams with the target-source system MONOLITHE (target + hot cavity source). The production efficiencies of lithium and sodium radioactive beams were determined. A new methodology, the « global method », has been developed as part of this thesis, for deducing diffusion, effusion and ionisation properties of these two elements with this ensemble. It is shown that the evolution of diffusion properties between different alkali elements is similar to noble gases.

The third one is the IGISOL technique (target + ion guide). The MI-GI-CHEMIN code was created for simulating the movement of ions in an ion guide filled with helium and a given concentration of impurities, including electric and magnetic fields. A first IGISOL prototype is in realisation at GANIL.

---

**Discipline** : Sciences de la matière et génie des procédés

---

**Mots clefs** : Physique nucléaire, Faisceaux d'ions radioactifs, Réactions de fragmentation, Processus de diffusion, Sources d'ions, Simulation par ordinateur

---

**Grand Accélérateur National d'Ions Lourds**

BP 55027

14 076 CAEN Cedex 5